UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA DYNAMIQUE ULTRA-RAPIDE DES PORTEURS DANS DES HÉTÉROSTRUCTURES LASER À PUITS QUANTIQUES MULTILPES D'InGaAsP

CHEDLY REJEB

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE

ET DE GÉNIE DES MATÉRIAUX

ÉCOLE POLYTECHNIQUE

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION

DU GRADE DE PHILOSOPHIAE DOCTOR (Ph. D.)

(GÉNIE PHYSIQUE)

NOVEMBRE, 2000

© Chedly REJEB, 2000.

National Library of Canada
Acquisitions and Bibliographic Services
395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque nationale du Canada
Acquisitions et services bibliographiques
395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-60940-5

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA DYNAMIQUE ULTRA-RAPIDE DES PORTEURS DANS DES HÉTÉROSTRUCTURES LASER À PUITS QUANTIQUES MULTILPES D'InGaAsP

Présentée par : REJEB, Chedly

En vue de l'obtention du grade de Philosophiæ Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de:

M. FAUCHER Guy, D. Sc., Président

M. MACIEJKO Romain, Ph. D., Membre et directeur de recherche

M. GAGNÉ Jean-Marie, D. Sc., Membre

M. FAFARD Simon, Ph. D., Membre

À mes très chers

HÉDI

MABROUKA

ABDELAZIZ

MONCEF

AMEL

WAJDI

"Every success is built on the ability and an ardent desire to do better than good enough"

REMERCIEMENTS

J'exprime ma reconnaissance et mes sincères remerciements à mon directeur de thèse M. Romain Maciejko, pour avoir dirigé mes recherches avec patience, clairvoyance et un niveau exceptionnel de professionnalisme. Je remercie M. Maciejko, pour le dynamisme qu'il a su si bien me transmettre tout au long de mes recherches. Sans ses conseils, sa disponibilité et les discussions fructueuses que nous avions eues, il eut été difficile de mener à bien cette thèse.

Je remercie vivement le Conseil de Recherches en Sciences Naturelles et en Génie du Canada (CRSNG) pour le soutien financier, sans quoi, les choses auraient été bien plus difficiles. Que tous les intervenants trouvent, ici, l'expression de ma reconnaissance.

Un sincère merci à M. Denis Morris du Centre de Recherches sur les propriétés électroniques de matériaux avancés, de l'Université de Sherbrooke, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et avoir guidé mes premiers pas de chercheur.

Je remercie énormément M. Richard Léonelli, du Groupe de Recherches en Physique et Technologie des Couches Minces (GCM), de l'Université de Montréal, pour m'avoir permis de compléter mes investigations par des mesures d'absorption et d'excitation de la photoluminescence dans son laboratoire.

Un sincère merci à M. R. A. Masut du Groupe de Recherches en Physique et Technologie des Couches Minces (GCM), de l'École Polytechnique de Montréal, pour m'avoir permis d'utiliser l'équipement de diffraction de rayons X de haute résolution.

Mes fraternels remerciements vont à tout membre de notre groupe de recherche. Que toutes celles et tous ceux qui ont été mes camarades pendant près de quatre ans, et particulièrement, ceux et celles avec qui j'ai partagé le même bureau, soient remerciés pour la bonne ambiance qu'ils ont su créer.

RÉSUMÉ

Les lasers à semi-conducteurs, à base d'InGaAsP, sont d'une grande importance dans les systèmes de communication. Par un choix approprié de la composition en élément III-V, on peut obtenir des lasers qui émettent sur une gamme de longueurs d'onde allant de 0.92 μm jusqu'à 1.68 μm. Sachant que les longueurs d'onde de 1.3 μm et de 1.55 μm sont la moins dispersée et la moins absorbée par les fibres optiques, on voit aisément l'utilité des quaternaires d'InGaAsP.

Aussi bien des études expérimentales que théoriques indiquent que les propriétés structurales, optiques et de transport des porteurs sont à l'origine des performances limitées des lasers à semi-conducteurs. La largeur de bande de modulation record, récemment rapportée, est très inférieure à ce qu'on prévoit théoriquement. Il est donc clair qu'une amélioration des performances des lasers à semi-conducteurs demande une compréhension plus approfondie de leurs propriétés et de la dynamique de relaxation et de transport des porteurs.

Nous nous proposons de contribuer à l'étude des processus de relaxation, du transport vertical et de la capture des porteurs dans des structures lasers à puits quantiques multiples d'InGaAsP-InP. La dynamique ultra-rapide des porteurs ainsi que certaines

caractéristiques optiques et structurales sont investiguées par les techniques suivantes: (i) la photoluminescence en régime continu, (ii) la photoluminescence résolue en temps et (iii) la diffraction de rayons X de haute résolution.

Nos résultats, obtenus par photoluminescence en régime continu, montrent que la diminution du gap accompagnant une augmentation de la température du réseau est le résultat de deux processus compétitifs et opposés. Des fluctuations dans les épaisseurs des puits quantiques ou dans celles des barrières causent une augmentation du gap à mesure que la température du réseau augmente, agissent ainsi contre le phénomène typique de diminution du gap. D'une étude de l'évolution de l'intensité de photoluminescence en fonction de la densité d'excitation, nous avons identifié différents processus de relaxation et de recombinaisons. À basse densité d'excitation, les porteurs se recombinent essentiellement de façon radiative. Toutefois, nous avons noté que les effets d'une inhomogénéité de composition et/ou des fluctuations des épaisseurs des couches de la région active ou toute imperfection d'interface sont non négligeables dans ce régime d'excitation. L'existence de tels phénomènes, crée des centres de piégeage des porteurs qui réduisent le taux de recombinaisons radiatives. Au fur et à mesure que la densité d'excitation augmente, les centres de piégeages se saturent et leurs effets diminuent. Quant au régime de fortes densités d'excitation, nous avons observé par les deux techniques optiques, que les recombinaisons Auger, l'échappement de porteurs des puits quantiques, le remplissage de bandes, la notion de porteurs et de phonons chauds et l'écrantage des interactions électron-phonon sont des mécanismes de grande influence sur

la dynamique des porteurs. En effet, le taux de relaxation des porteurs est fortement réduit et l'efficacité de capture des porteurs par les puits quantiques est sévèrement diminuée. Le temps de vie des porteurs augmente. Une telle conséquence ne fait que diminuer la largeur de bande de modulation d'un laser.

Par photoluminescence résolue en temps, nous avons identifié des signatures de transport et de capture des porteurs. Selon les conditions expérimentales de température de réseau, de longueur d'onde d'excitation et de densité d'excitation, les temps de transport et de capture varient entre ~ 4 ps et 15 ps et ~ 3 ps et ~ 6 ps, respectivement. Ces temps sont jugés très élevés pour avoir une large bande de modulation. Finalement, nous avons montré que la température effective des porteurs augmente avec la diminution de la longueur d'onde d'excitation. Ce phénomène combiné au fait que le supplément d'énergie transféré à un électron augmente avec l'augmentation de l'énergie d'excitation, nous avons observé un retardement (de ~3 ps) dans la montée de la photoluminescence des puits quantiques. Ce phénomène est fort probablement dû à un aller et retour d'électrons entre les vallées Γ et L.

La diffraction de rayons X de haute résolution nous a permis de caractériser structurellement parlant, les hétérostructures lasers à puits quantiques multiples. Nous avons évalué les compositions des différentes couches dans les trois structures, ainsi que les contraintes qui leur sont associées. Les valeurs trouvées, expérimentalement et par simulations des spectres de diffraction, diffèrent quelque peu de ce qu'on visait obtenir au

moment de la croissance des structures. Toutefois, le profil des spectres de diffraction de rayons X ainsi qu'un temps de vie variant d'une nanonseconde à 1.5 ns, montrent que ces lasers sont d'une bonne qualité.

ABSTRACT

Semiconductor lasers are critically important elements in optical communications systems because of their small size, high power, ease modulation and their potentially low cost because the entire laser can be fabricated using planar processing. InGaAsP devices operating at wavelengths of 1.3 and 1.55 μm are most suitable for fiber optic links. In Fact, InGaAsP affords the possibility of freely choosing the band gap by varying the composition in a range suitable for various applications. Consequently, the quaternary InGaAsP was the subject of numerous investigations in recent years. Yet, there are a number of physical processes limiting the performance of based semiconductor lasers on which relatively little is known. Carrier capture mechanisms play a crucial role in determining the performance of quantum well based devices such as lasers and intersubband photodetectors. As an example, a higher gain in a quantum well laser lowers the threshold current and a long carrier lifetime improves the responsitivity of a detector. A higher modulation bandwidth of a semiconductor laser will allow a full use of the large fiber optic bandwidth, which is underutilized in today's installations. It is obvious that under direct modulation at high frequency, the laser should translate as fast and precisely as possible the temporal variation of the modulation into a corresponding intensity variation of its emitted light. Thus, in MQW laser structures, the highest attainable bit rates depend on carrier dynamics.

To remedy the situation, one witnesses a sustained effort in improving the high-speed performance of semiconductor lasers and amplifiers based on these materials. Notwithstanding the large number of experimental and theoretical efforts made so far, the physical mechanisms involved in carrier dynamics in multiple quantum wells are not yet well understood. In this work, optical and structural properties as well as vertical transport of three different heterostructures grown by metalorganic vapor phase epitaxy and emitting at 1.33 μm and 1.55 μm have been studied using continuous wave and time-resolved photoluminescence and high-resolution x-ray diffraction.

For the continuous wave photoluminescence measurements, the overall observed red shift with increasing lattice temperature is interpreted as resulting from two opposite and competitive processes: band-gap shrinkage (dominant) and blue shift caused by fluctuations in the QW layer thickness across the lateral sample direction. In the observed full width at half maximum, we identified a component of ~ 8 meV as a contribution from longitudinal optical phonons. Moreover, at high excitation densities, it is shown that carrier spillover and Auger recombination are the major mechanisms limiting the quantum efficiency. For time-resolved photoluminescence measurements and in the initial regime following the excitation, high effective carrier temperatures T_C different from the lattice temperature are reported. A significant signatures of carrier transport and carrier capture are observed with characteristic times ranging from ~ 4 to ~ 15 ps and from ~ 3 ps to ~ 6 ps, respectively, depending on lattice temperature and the excitation density. Carrier cooling rates are discussed in terms of concurrent and

opposite scattering mechanisms. In fact, it is found that the effect of the electron–electron, elcctron–hole, hole–hole, and screened carrier–phonon interactions on the ultra-fast relaxation of photo-excited carriers in the active region are very important. Especially, screening considerably weakens the electron–phonon interactions compared to the hole-phonon interactions. On decreasing the excitation wavelength, the rise times of the quantum wells and the confinement region increase slightly (~3 ps). The observed difference is attributed to a Γ-L electron transfer induced by a higher initial carrier temperature, which is associated with the shorter excitation wavelength. Depending on measurement conditions, carrier lifetime ranging from 1 ns to 1.5 ns was observed. This is an indication of good quality samples, which was confirmed by high-resolution x-ray diffraction. The later technique allowed us to estimate the compositions of the different layers and the associated strains. An attempted correlation between the information obtained from the three techniques, regarding carrier dynamics and structural characteristics, is given.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....iv

REMERCIEMENTS.....v

RÉSUMÉ.....vii

ABSTRACT.....xi

TABLE DES MATIÈRES.....xiv

LISTE DES TABLEAUX.....xix

LISTE DES FIGURES.....xxiii

LISTE DES ANNEXES.....xxxii

INTRODUCTION.....1

CHAPITRE 1: Lasers à semi-conducteurs

Problématique et objectifs de nos recherches.....9

1.1 Introduction.....9

1.2 Choix des structure, problématique et objectifs de nos recherches.....9

1.3 Bref rappel des effets de confinement.....13

1.4 Effets d'un désaccord de maille

Contrainte en compression ou en tension.....16

1.5 Processus de relaxation des porteurs dans un composé III-V photo-excité.....18

1.6 Constantes de temps caractéristiques de chaque processus.....19

1.7 Notion de température effective des porteurs.....20

1.8 Taux de refroidissement des électrons.....23

1.8.1 Taux de refroidissement par interactions avec le potentiel de déformation.....23

1.8.2 Taux de refroidissement par interactions piézo-électriques.....24

1.8.3 Taux de refroidissement par interactions avec des phonons optiques polaires.....24

1.8.4 Refroidissement par interactions avec des phonons optiques non polaires.....25

1.9 Réduction du taux de refroidissement des porteurs

Effet d'écrantage ou de phonons chauds?.....27

1.10 Conclusion.....28

CHAPITRE 2: Structures à puits quantiques multiples étudiées

Techniques expérimentales utilisées.....30

2.1 Introduction.....30

2.2 Description des structures à puits quantiques multiples.....30

2.3 Principes de la photoluminescence résolue dans le temps

Conversion vers les hautes fréquences.....33

2.3.1 Condition d'accord de phase.....37

2.3.2 Efficacité quantique de l'opération de conversion

vers les hautes fréquences.....39

2.4 Certains facteurs limitant l'efficacité quantique de la conversion.....40

2.4.1 L'angle exprimant l'écart entre la propagation de l'énergie et la normale à l'onde.....41

2.4.2 Qualité du faisceau pompe.....41

2.4.3 La largeur spectrale.....42

2.4.4 Différence entre les vitesses de groupe.....43

2.4.5 Angle d'acceptance.....44

2.5 Montage expérimental de PLRT.....45

2.5.1 Optimisation du signal.....47

2.5.2 Réglage de l'origine de la ligne à délais.....49

2.6 Certaines sources de bruit.....50

2.7 Montage expérimental de photoluminescence en régime continu.....51

2.8 Description du montage expérimental de la diffraction de rayons X à haute résolution.....53

CHAPITRE 3: Interprétation des résultats obtenus par photoluminescence standard.....57

3.1 Introduction.....57

3.2 Résultats et interprétation des mesures de PL-cw.....58

3.2.1. Interprétation de l'évolution de la PL en fonction de la densité d'excitation.....67

3.2.2. Évolution de la PL en fonction de la température du réseau.....82

3.3 Conclusion.....93

CHAPITRE 4: Interprétation des résultats obtenus par photoluminescence résolue en temps 94

4.1 Introduction.....94

4.2 Énergie acquise par les porteurs suite à une excitation optique.....95

4.2.1 Résultats d'une excitation à λ = 740 nm (1.675 eV).....96

4.2.1.1 Estimation des temps de transport et de capture des porteurs.....103

4.2.1.2 Effet d'une baisse de la température du réseau.....108

4.2.1.3 Effets d'une variation la densité d'excitation sur les cinétiques de certaines bandes.....115

4.2.2 Résultats d'excitations à λ = 820 nm et à λ = 880 nm.....123

4.3 Température effective des porteurs. Porteurs chauds.....136

4.4 Lien entre la dynamique des porteurs et les performances d'un laser.....141

4.5 Conclusion.....143

CHAPITRE 5: Interprétation des résultats obtenus par diffraction de rayons X de haute résolution.....145

5.1 Introduction.....145

5.2 Diffraction de RX et liens entre espace réel et espace réciproque.....146

5.3 Comment déterminer $a_{//}$ et $a_{\perp}$.....149

5.4 Résultats et analyse.....153

5.4.1. Largeur à mi-hauteur et intensité des pics de diffraction.....159

5.4.2. Séparation angulaire entre le pic de diffraction d'ordre zéro de l'hétérostructure et celui du substrat.....163

5.5 Résultats des simulations des spectres de DRXHR.....169

5.6 Pourquoi penser à l'existence éventuelle de domaines ordonnés dans la structures C?.....175

5.7 Mécanisme de formation de domaines ordonnés et son investigation par diffraction de RX.....176

5.8 Perspectives de recherches.....187

5.8.1. En vue d'une meilleure caractérisation structurale.....187

5.8.2. En vue d'une meilleure caractérisation des propriétés optiques et de transport des structures laser.....191

5.9 Conclusion.....193

CONCLUSION GÉNÉRALE.....195

BIBLIOGRAPHIE.....205

ANNEXES.....225

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 3.1 Densité de porteurs n_{2D} pour diverses densité d'excitation.....67

Tableau 3.2 Valeurs de l'exposant α selon le processus dominant de recombinaison. 79

Tableau 3.3 Pentes des tracées Log (I_{PL}) en fonction de Log (I_{DE}).....82

Tableau 3.4 Estimation de l'énergie d'activation des processus non radiatifs et du temps de vie radiatif des porteurs à partir du lissage de $I_{PL}(T_L)$. 92

Tableau 4.1 Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans la Structure A. $\lambda_{exci.}$ = 740 nm et T_L = 77 K. 106

Tableau 4.2 Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans A. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.....111

Tableau 4.3 Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans B et C. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.....111

Tableau 4.4 Temps de montées et descentes de certaines bandes dans A. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 5100 W/cm2 et TL = 18 K. 120

Tableau 4.5 Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans B et C. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 5100 W/cm^2 et T_L = 18 K.....120

Tableau 4.6 Température effective des porteurs dans l'InP de la structure A. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm et T_L = 18 K..... 121

Tableau 4.7 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure A. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm et T_L = 77 K. 129

Tableau 4.8 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure A. $\lambda_{exci.}$ = 880 nm et T_L = 77 K. 129

Tableau 4.9 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure B. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm et T_L = 77 K. 130

Tableau 4.10 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure B. $\lambda_{exci.}$ = 880 nm et T_L = 77 K. 130

Tableau 4.11 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure C. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm et T_L = 77 K. 131

Tableau 4.12 Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure C. $\lambda_{exci.}$ = 880 nm et T_L = 77 K. 131

Tableau 4.13 Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 740 nm, D. E. = 3200 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 138

Tableau 4.14 Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 740 nm, D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 140

Tableau 4.15 Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm, D. E. = 3200 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 141

Tableau 5.1 Valeurs de d_{hkl}, θ_S, φ_S, ω_+ et ω_- pour certains plans {hkl} dans de l'InP. La direction de croissance de la couche est [001]..... 153

Tableau 5.2 FWHM des pics satellites d'ordre (–1) évalué pour les diffractions {004}, {115$^+$} et {115$^-$} pour les structures A, B et C..... 159

Tableau 5.3 Valeurs des séparations angulaires entre les pics de diffraction d'ordre zéro associés aux hétérostructures A, B et C et celui du substrat. Espacements angulaires entre les pics satellites et FWHM évalués pour toutes les diffractions ({004}, {115$^+$} et {115$^-$})..... 164

Tableau 5.4 Paramètres de mailles $a_{//}$, $a_{\perp}$ et a_{Cube} et des taux de relaxation (R%) des hétérostructures périodiques A, B et C..... 166

Tableau 5.5 Périodes des hétérostructures dans A, B et C..... 167

Tableau 5.6 Inclinaison angulaire de la normale à la surface du substrat par rapport à la direction [001] dans A, B et C. 170

Tableau 5.7 Valeurs des compositions (x,y), des contraintes, des paramètres de mailles et des épaisseurs des diverses couches de la structure A..... 172

Tableau 5.8 Valeurs des compositions (x,y), des épaisseurs, des paramètres de mailles et des contraintes des diverses couches de la structure B..... 173

Tableau 5.9 Valeurs des compositions (x,y), des épaisseurs, des paramètres de mailles et des contraintes des diverses couches de la structure C..... 174

Tableau 5.10 Valeurs de d_{hkl}, θ, φ, ω^+ et ω^- pour les plans {±1/2, ±1/2, 2.5}..... 179

Tableau A-1 Rise and decay times of some bands observed in structure A. $\lambda_{exc.}$= 740 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K. 244

Tableau A-2 τ_r and τ_d of some bands observed in structure A and of the QWs in B and C. $\lambda_{exc.}$= 820 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K..... 246

Tableau A-3 τ_r and τ_d of some bands observed in structure A and of the QWs in B and C. $\lambda_{exc.}$= 880 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K. 246

Tableau B-1 Full width at half maximum of the peak near 1 eV obtained from Monte Carlo calculations and experimental results for different times. 272

Tableau C-1 Time evolution of T_C in the structure A for different excitation densities and T_L = 77K. 281

Tableau C-2 Time evolution of T_C in the structure B for different excitation densities and T_L = 77K. 281

Tableau C-3 Time evolution of T_C in the structure C for different excitation densities and T_L = 77K. 281

Tableau C-4 Decay constants of some bands in the structure A. Excitation density ≈ 3200 W/cm^2 and T_L = 77 K. 283

Tableau C-5 Rise times of some bands observed in structure A. Excitation density ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K. 284

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1: Représentation des vecteurs d'onde et des densités d'états dans un semi-conducteur massif et dans des structures 2D, 1D et 0D. Mise en évidence des effets de confinement. 15

Figure 1.2: Structure de bandes et transitions dans un puits quantique. 15

Figure 1.3 Structures de bandes d'un semi-conducteur à gap direct sous contrainte. 18

Figure 1.4 Les différents régimes de retour à l'équilibre thermique d'un semi-conducteur photo-excité et leurs échelles de temps 21

Figure 1.5 Schéma simplifié du retour à l'équilibre d'un semi-conducteur photo-excité..... 22

Figure 2.1 Schéma de la structure A. Diode laser à quatre puits quantiques multiples émettant à 1.55 μm à 300 K. 31

Figure 2.2 Schéma des structures B et C. Diodes laser à huit et douze puits quantiques multiples respectivement, émettant à 1.33 μm à 300 K. 32

Figure 2.3 Description des vecteurs d'ondes impliqués dans un processus de génération de somme de fréquences. 34

Figure 2.4 Illustration du processus de génération de la somme des fréquences. 36

Figure 2.5 La direction de k_S est repérée par les coordonnées (θ, ϕ). 38

Figure 2.6 Schéma du montage de PLRT utilisé. 46

Figure 2.7 Illustration de la génération du signal à la somme de deux fréquences et de son optimisation. 48

Figure 2.8 Schéma du montage de photoluminescence standard. 52

Figure 2.9 Schéma d'un diffractomètre de rayons X à haute résolution. 54

Figure 2.10 Configuration spatiale du goniomètre. 55

Figure 3.1 Spectres de photoluminescence de la structure A à T_L = 77 K pour diverses densités d'excitation. 59

Figure 3.2 Spectres de photoluminescence de la structure B à T_L = 77 K pour diverses densités d'excitation. 60

Figure 3.3 Spectres de photoluminescence de la structure C à T_L = 77 K pour diverses densités d'excitation. 60

Figure 3.4 Spectres de photoluminescence de la structure A à T_L = 300 K pour diverses densités d'excitation. 63

Figure 3.5 Spectres de photoluminescence de la structure B à T_L = 300 K pour diverses densités d'excitation 64

Figure 3.6 Spectres de photoluminescence de la structure C à T_L = 300 K pour diverses densités d'excitation. 65

Figure 3.7 Photoluminescence issue de la région de confinement de A 67

Figure 3.8 Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de A avec la densité d'excitation 68

Figure 3.9 Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de B avec la densité d'excitation 69

Figure 3.10 Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de C avec la densité d'excitation 69

Figure 3.11 Illustration schématique de modulation de la bande interdite et des possibilités de relaxation des porteurs 73

Figure 3.12 Évolution des largeurs à mi-hauteur de la PL de A, B et C en fonction de la densité d'excitation pour deux températures de réseau $T_L = 77$ K et $T_L = 300$ K. 74

Figure 3.13 Variation du FWHM des spectres de PL de la structure A en fonction de la température du réseau. La densité d'excitation est ~ 5 W/cm^2 76

Figure 3.14 Évolutions des PL intégrées en énergies, en fonction de la densité d'excitation des structures A, B et C à $T_L = 77$ K 81

Figure 3.15 Évolutions des PL intégrées en énergies, en fonction de la densité d'excitation des structures A, B et C à $T_L = 300$ K 81

Figure 3.16 Évolution de la PL issue de la structure A en fonction de la température du réseau 83

Figure 3.17 Évolution de la PL issue de la structure B en fonction de la température du réseau 84

Figure 3.18 Évolution de la PL issue de la structure C en fonction de la température du réseau 85

Figure 3.19 Évolution des positions des pics des PL en fonction des températures des réseaux des structures A et C. 86

Figure 3.20 Spectre d'absorption en fonction de T_L de la structure C..... 89

Figure 3.21 Variations des PL intégrées en énergie en fonction de T_L pour les structures A et C..... 92

Figure 4.1 Spectres de PL résolue en temps de la structure A, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K. 97

Figure 4.2 Spectres de photoluminescence résolue dans le temps de la structure B, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 98

Figure 4.3 Spectres de photoluminescence résolue dans le temps de la structure C, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 100

Figure 4.4 (a) Rapports de PL intégrée en énergie provenant de différentes régions de la structure C. (b) Évolution temporelle des rapports de PL, $(PL_{PQ} + PL_{RC})/PL_{InP}$, dans les trois structures A, B, et C. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K..... 101

Figure 4.5 Évolution temporelle de la PL issue de certaines bandes observées dans A. D. E. = 1000 W/cm^2, $\lambda_{exc.}$ = 740 nm et T_L = 77 K..... 104

Figure 4.6 Évolution temporelle de la PL issue de certaines bandes observées dans A. D. E. = 3200 W/cm^2, $\lambda_{exc.}$ = 740 nm et T_L = 77 K..... 105

Figure 4.7 Spectres typiques de la structure A, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K. 109

Figure 4.8 Spectres typiques de la structure B, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K. 109

Figure 4.9 Spectres typiques de la structure C, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K. 110

Figure 4.10 Variation de l'évolution temporelle de la PL issue (a) des PQ de la structure A et (b) d'une bande de la région de confinement avec T_L. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 110

Figure 4.11 Évolution temporelle de la PL (a) des PQ et d'une bande de la région de confinement (RC), (b) une autre bande de la RC et une bande de l'InP dans les structures B et C. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K. 114

Figure 4.12 Spectres résolus en temps de la structure A pour différentes densités d'excitation. 116

Figure 4.13 Spectres résolus dans le temps de la structure B pour différentes densités d'excitation. 117

Figure 4.14 Spectres résolus dans le temps de la structure C pour différentes densités d'excitation. 118

Figure 4.15 Influence de la densité d'excitation sur la cinétique de bandes de la RC (1.079 eV et 1.207 eV) de la structure A. T_L = 18 K. 119

Figure 4.16 (a) Cinétiques des PQ (1.061 eV) et d'une bande de la région de confinement (1.142 eV), (b) cinétiques de bandes de la région de confinement (1.207 eV, 1.262 eV) dans les structures B et C. D. E. = 5100 W/cm^2 et T_L = 18 K. 119

Figure 4.17 Spectres à différents délais de la structure A, (a) λ_{exci} = 820 nm, (b) λ_{exci} = 880 nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K 125

Figure 4.18 Spectres à différents délais de la structure B, (a) λ_{exci} = 820 nm, (b) λ_{exci} = 880 nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K 126

Figure 4.19 Spectres à différents délais de la structure C, (a) λ_{exci} = 820 nm, (b) λ_{exci} = 880 nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K 127

Figure 4.20 Évolution temporelle des PQ et d'une bande de la région de confinement dans A. Les longueurs d'onde d'excitation sont indiquées entre parenthèse dans la légende. T_L = 77 K et D. E. = 1000 W/cm^2 133

Figure 4.21 Évolutions temporelles des T_C dans A, B et C. La densité d'excitation est de 3200 W/cm^2 , λ_{exci} = 740 nm et T_L = 77 K. 138

Figure 4.22 Évolutions temporelles des T_C dans A pour différentes densités et longueurs d'ondes d'excitation. T_L = 77 K. 140

Figure 5.1 Spectre de diffraction de RX donné par un supra-réseau (supposé parfait) constitué de N périodes formées de deux matériaux m1 et m2 ayant des facteurs de facteurs de structures différents. 147

Figure 5.2 Différents états de contraintes d'une couche déposée sur un substrat. 150

Figure 5.3 Diffraction de RX dans les géométries positive et négative. 151

Figure 5.4 Spectres de DRXHR par les plans {004} dans A, B et C. 155

Figure 5.5 Spectres de DRXHR par les plans $\{115\}^+$ dans A, B et C. 156

Figure 5.6 Spectres de DRXHR par les plans $\{115\}^-$ dans A, B et C. 157

Figure 5.7 Comparaison du spectre expérimental de la structure A à celui obtenu par simulation lorsque la région de confinement est omise. 158

Figure 5.8 (a) Surface non reconstruite et chaque atome possède deux liaisons pendantes, (b) réduction des liaisons pendantes par dimérisation 178

Figure 5.9 Occupation préférentielle de sites résultant d'une contrainte induite par dimérisation à la surface du substrat.. 179

Figure 5.10 Les deux variantes d'une structure ordonnée du type CuPt. 181

Figure 5.11 Illustration des plans {½, ½, n/2} 182

Figure 5.12 Schéma de l'empilement des couches et illustration des coupes. 188

Figure 5.13 Illustration de la gravure et du sens de balayage par les électrons..... 189

Figure 5.14 (a) Sphère d'Éwald illustrant la corrélation entre type d'information et mode de balayage. (b) Principe de la cartographie du réseau réciproque..... 190

Figure A-1 band diagram of A... 230

Figure A-2 band diagram of B and C..... 230

Figure A-3 Typical Cw-PL spectra of structures A, B and C. 232

Figure A-4 T_C and main peak position evolution with the excitation density in structure B..... 235

Figure A-5 Evolution of the energy-integrated PL with the excitation density of A, B and C. 235

Figure A-6 PL dependence on lattice temperature of structure C. 237

Figure A-7 Temperature dependence of PL peak energy of structure A and C. 238

Figure A-8 Evolution of the energy integrated PL intensity with T_L for A and C.....240

Figure A-9 Variation of the FWHM of PL spectra of A with T_L. 240

Figure A-10 TRPL spectra of structure A.....242

Figure A-11 QWs and BL PL temporal evolution.....243

Figure A-12 Temporal evolution of the CR.....243

Figure A-13 Time plot of structure A QWs excited at 820 nm and 880 nm.. 246

Figure B-1 Schematic representation of the structure under investigation.....255

Figure B-2 Calculated mean-electron energy vs time (a) in the QWs, (b) in the 1.25 Q barriers for 77K 261

Figure B-3 Calculated distribution functions (a) in the QWs and (b) in the 1.25 Q barriers for electrons and holes at 5 ps, T = 77 K. 263

Figure B-4 Calculated carrier densities vs position (a) at 0 ps, (b) at 10 ps, (c) at 50 ps, and (d) at 100 ps for T = 77 K 264

Figure B-5 Calculated mean-carrier densities vs time in the quantum wells; solid line, electrons; dashed line holes. 266

Figure B-6 Time derivative of the carrier densities in the quantum wells, solid line, electrons; dashed line, holes for T = 77 K. 266

Figure B-7 Calculated recombination rates for T = 77 K; (a) Auger recombination and (b) spontaneous recombination.. 269

Figure B-8 Calculated PL signal as a function of energy and time for T = 77 K, emitted from (a) quantum wells and (b) 1.25 Q barriers.....269

Figure B-9 Calculated PL signal vs energy at 10 ps emitted from (a) quantum wells and (b) 1.25 Q barriers; with and without particle-particle effect. T = 77 K. 270

Figure B-10 Experimental PL spectra at 77 K, where the excitation power is 40 mW. 270

Figure B-11 Experimental PL spectra at 77 K, where the excitation power is 125 mW 271

Figure B-12 Calculated PL spectra for T = 77 K. 271

Figure C-1 Schematic band diagram of A. 278

Figure C-2 Schematic band diagram of B and C. 278

Figure C-3 TRPL spectra of A. 279

Figure C-4 TRPL spectra of B. 279

Figure C-5 TRPL spectra of C. 280

Figure C-6 Temporal evolution of the InP, barriers and QW's luminescence. 282

Figure C-7 Temporal evolution of the confinement region luminescence. 282

Figure C-8 Rise times of some bands in A. ED ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K. 284

Figure C-9 Rise times of some bands in A. ED ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K. 284

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A: Optical Properties of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ Multiple Quantum Wells Heterostructure Lasers.....225

Abstract.....226

1. Introduction.....227

2. MQW heterostructures and experimental procedure.....229

3. Results and discussion.....230

3.1. Continuous-wave photoluminescence.....230

3.1.1 Continuous-wave photoluminescence versus excitation density.....231

3.1.2 Continuous-wave photoluminescence versus lattice temperature.....236

3.2. TRPL measurements results.....241

4. Conclusion.....248

ANNEXE B: Photoluminescence Study of Carrier Dynamics and Recombinations in a Strained InGaAsP/InP multiple quantum well Structures.....251

Abstract.....252

1. Introduction.....252

2. Experiment.....254

3. Simulation details.....256

A. Initial conditions.....257

B. Recombination model.....258

4. Results and discussion.....260

A. The effect of the carrier–carrier and screened carrier–phonon interactions.....260

B. Carrier capture and recombination.....263

C. Calculated and experimental TRPL spectra.....267

5. Conclusion.....273

ANNEXE C: Carrier dynamics in InGaAsP MQW laser structures.....275

Abstract.....276

1. Introduction.....276

2. Experiment.....277

3. Results and discussion.....278

INTRODUCTION

Un système de communication de longue distance requiert un laser émettant à une longueur d'onde la moins dispersée (1.27-1.32 μm) ou la moins absorbée (1.3 μm ou 1,55 μm) par une fibre optique. Ce laser doit avoir une haute puissance et un grand rapport signal/bruit. De plus, la demande sans cesse croissante en matière de rapidité de transfert de données exige une dynamique des porteurs de plus en plus rapide. D'un autre côté, dans le but de réduire les effets indésirables qu'accompagnent le réchauffement d'un laser, le courant seuil de ce dernier doit être faible. De plus, visant à exploiter pleinement la large bande que possèdent les fibres optiques, on souhaite augmenter de plus en plus le nombre d'ondes qui y sont transmises. Pour atteindre cet objectif, l'étalement en fréquence de la raie d'émission d'un laser doit être très étroit. À cause de telles exigences, l'optimisation de la technologie de fabrication des lasers et de leurs propriétés optiques et de transport est devenue un champ de recherche très important.

Des hétérostructures à base de semi-conducteurs III-V sont d'une grande importance dans la fabrication de composants opto-électroniques. En effet, l'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ est un alliage quaternaire ayant un gap direct. On peut l'utiliser comme commutateur de très haute vitesse, source de lumière (laser) ou détecteur aux longueurs d'ondes des communications sus-mentionnées. L'ajustement de son gap se fait par un choix judicieux

de la composition (x,y) en éléments III-V. En respectant la condition d'accord de mailles avec de l'InP ($y \approx 2.2\ x$), la longueur d'onde d'émission de l'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ peut être accordée de façon continue de $\lambda = 0.92$ µm jusqu'à $\lambda = 1.68$ µm [1]. Ces longueurs d'ondes s'obtiennent par une variation continue de la composition (x, y) de $y = 0$ à $y = 1$.

Les efforts de recherche déployés dans les domaines théorique et expérimental ont réalisé beaucoup de progrès en ce qui concerne les performances des lasers. Toutefois, compte tenu des nécessités grandissantes de notre époque, nous sommes constamment appelés à améliorer d'avantage ces performances qui n'ont d'ailleurs pas atteint les prédictions escomptées théoriquement. En effet, la largeur de bande de modulation record n'est que de 20 GHz pour des diodes à base d'InP [2] et de 40 GHz pour de l'InGaAs [3]; alors qu'en théorie on prévoit pouvoir atteindre des largeurs de bande de modulation allant de 60 à 90 GHz [4, 5]. Dans le but de réduire l'écart entre la théorie et la réalité expérimentale, les chercheurs se sont penchés à investiguer les processus physiques qui posent la limite ultime de la fréquence de modulation des lasers à puits quantiques. Il est évident qu'on cherche à savoir de quoi dépend la fréquence de modulation et comment faire pour l'augmenter. La fréquence des oscillations de relaxation est donnée par $f_r = \frac{1}{2\pi}\sqrt{v_g(\partial g/\partial n)S(1/\tau_p)}$; où v_g est la vitesse de groupe dans la cavité, $(\partial g/\partial n)$ est le gain différentiel, S et τ_p sont la densité de photons et leur temps de vie respectivement [6-14]. La largeur maximale de la bande de modulation pour un laser à semi-conducteur est proportionnelle à f_r^2.

Afin d'augmenter la densité de photons et de réduire le temps de vie on se doit d'améliorer le confinement des modes optiques et d'utiliser une cavité la plus courte possible, respectivement. Toutefois, même si ces conditions plus ou moins sont satisfaites, la fréquence de modulation des lasers n'a toujours atteint le niveau souhaité. Récemment, de nombreux groupes de recherche ont investigué des processus physiques qui pourraient être à l'origine de la limitation de la largeur de bande de modulation des lasers. Les processus les plus importants ainsi que les paramètres qui leur sont associés sont: (a) Le coefficient du gain optique non linéaire qu'on attribue à des phénomènes de saturation du gain tels que le brûlage de trou (spectral hole burning) [15-21], ou à des ondes stationnaires dans la cavité résultantes de la formation d'un réseau diélectrique [22-24]; (b) le transport des porteurs [20, 25-32] incluant leur passage par effet tunnel d'un puits à un autre [27], leur capture par les puits et leur transfert entres puits et barrières [33-36]; (c) le réchauffement dynamique des porteurs qu'on attribue au "pompage" optique [37-51], aux processus d'émissions spontanée et stimulée [19, 42, 43], à l'absorption de porteurs libres [42-44], à l'absorption à deux photons [45] et aux processus Auger [46-50]. La majorité de ces phénomènes ont pour effet de réchauffer les porteurs. On parle alors de distributions de porteurs chauds et de phonons chauds [41, 44, 52].

Par ailleurs, les techniques de croissance par épitaxie d'hétérostructures laser ont beaucoup évolué ces dernières années. Par conséquent, la conception d'un profile particulier de bandes d'énergie est devenu possible. De tels accomplissements ont incité

les scientifiques à développer de nouvelles idées afin d'améliorer les performances des lasers. En effet, l'usage de la notion de contrainte compressive dans les hétérostructures laser s'est avéré bénéfique. En général, les scientifiques sont d'accord sur le fait qu'une contrainte compressive réduit la densité d'états dc la bande de valence induisant ainsi, une réduction du courant seuil d'émission laser et des recombinaisons Auger et une augmentation du gain différentiel $(\partial g / \partial n)$[53-59]. Il en résulte que la vitesse des porteurs et conséquemment, la bande de modulation du laser doivent augmenter. D'un autre côté, quelques groupes de recherche ont rapporté qu'un dopage du type p des régions de confinement réduit le temps de transport des porteurs [60-62].

En dépit des progrès scientifiques énormes, les performances des lasers demeurent contrôlées par une dynamique de porteurs qui n'est pas complètement élucidée. La compréhension des facteurs qui limitent la fréquence de modulation et la connaissance détaillée des processus de transport et de capture (par les puits) sont alors d'une grande importance pour la conception de composants opto-électroniques ou photoniques ultra rapides.

La surface, lieu des contacts électriques ou d'excitation optique, est généralement située à quelques microns des puits quantiques. Les porteurs générés dans cette surface diffusent vers les puits quantiques. Arrivés au-dessus des puits, ces porteurs relaxent en perdant de l'énergie avant d'être capturer par les puits. Tang et collaborateurs ont démontré que le taux d'injection des porteurs dans les puits quantiques diminuait avec la largeur des puits.

Deveaud et collaborateurs [63], expliquaient ce comportement par le fait que la probabilité d'émission de phonons par les porteurs diminuait avec la largeur du puits. Quelques années plus tard, d'autres études ont rapporté des résultas forts différents. En effet, Lo et collaborateurs [64] affirmaient que dans certaines conditions, le taux de capture des porteurs augmentait avec la largeur du puits. Tandis que des résultats d'autres groupes de recherche, montrent une indépendance du taux capture par rapport à la largeur du puits [65]. Ces résultats forts différents pourraient s'expliquer par des qualités d'échantillons fort différentes. Du côté théorique, Brum et Bastard [66] ont introduit un modèle quantique qui prédisait des oscillations du taux de transitions en fonction de la largeur du puits. Toutefois, à notre connaissance, aucune mesure expérimentale n'a pu observer de telles oscillations. Une étude des interactions électron-électron et électron-phonon a démontré que les oscillations du temps de capture en fonction de la largeur du puits sont fortement atténuées lorsque la densité de porteurs est élevée [67].

Les performances d'un laser (largeur à mi-hauteur de sa raie d'émission, sa bande de modulation, son courant seuil, le rapport signal/bruit, la puissance à sa sortie) dépendent étroitement des qualités structurales des couches qui le constituent et des propriétés optiques et de transport des porteurs dans ces couches. Dans cette thèse, nous nous proposons d'étudier les processus de relaxation des porteurs et d'évaluer les temps de transport et de capture des porteurs dans trois structures lasers à puits quantiques multiples, émettant à des longueurs d'ondes utiles pour les communications optiques

(1.33 μm et 1.55 μm à la température ambiante). Ces mécanismes physiques sont, à notre avis, à l'origine de la limitation des performances d'un laser. Un premier caractère original de nos recherches consiste à choisir des longueurs d'ondes d'excitation de façon à inclure ou à exclure des temps associés au transport de porteurs et/ou à leur transfert entre les vallées subsidiaires de la bande de conduction, Γ-L. De plus, nous effectuerons une caractérisation structurale des trois hétérostructures à l'aide de la diffraction de rayons X de haute résolution. Une corrélation entre les résultats de cette caractérisation structurale et ceux obtenus par des techniques d'investigations optiques (photoluminescence standard et photoluminescence résolue en temps) constitue un autre élément original de nos recherches.

Dans le chapitre 1, nous décrivons brièvement certaines propriétés des structures laser à puits quantiques. Il s'agira essentiellement de mettre en relief certains effets de confinement sur les bandes d'énergie et le degré de liberté de mouvement des porteurs dans de telles structures. Nous parlerons des processus de relaxation des porteurs en précisant, dans la mesure du possible, leurs échelles de temps. Certains mécanismes qui ralentissent les processus de relaxation seront aussi discutés. Le chapitre 2 est consacré à la description détaillée des trois structures laser à puits quantiques multiples que nous avons étudiées et des techniques expérimentales utilisées. Les techniques de photoluminescence standard et résolue en temps ainsi que la diffraction de rayons x de haute résolution seront décrites.

Le chapitre 3 est consacré à la présentation et à l'analyse des résultats obtenus par photoluminescence standard. Cette technique nous permet d'étudier, dans un premier temps, l'influence de la densité d'excitation sur l'intensité de la luminescence et d'en déduire les principaux mécanismes de recombinaisons des porteurs. Quant à l'influence de la densité d'excitation sur la position du pic de photoluminescence et sur sa largeur à mi-hauteur, elle nous renseigne essentiellement sur la qualité de l'échantillon en termes d'interface entre les couches, d'homogénéité de la composition et la constance des épaisseurs de chaque couche. Par ailleurs, l'évolution de la température effective des porteurs avec la densité d'excitation sera examinée. Cette évolution reflète des processus de relaxation et un éventuel écrantage des interactions électron-phonons optiques. Notons qu'un écrantage des interactions électron-phonons optiques réduit le taux de refroidissement des porteurs et par le fait même, affecte les performances d'un laser.

Dans le chapitre 4, nous présentons et interprétons les résultats obtenus par photoluminescence résolue en temps. Nous évaluerons les temps de transport des porteurs depuis une couche tampon d'InP (loin des puits) jusqu'à leur arrivée à la région active. Le temps de capture sera aussi évalué. Nous étudierons l'évolution temporelle de la photoluminescence et nous en déduirons le temps de vie des porteurs. En se basant sur nos résultats, la relaxation des porteurs sera discutée en termes d'interactions porteur-porteur (électron-électron, trou-trou et électron-trou) et d'interactions électron-phonon (optique ou acoustique). Certains résultats expérimentaux seront comparés à des simulations Monte Carlo, réalisée au sein de notre équipe de recherche. Dans les mesures

de photoluminescence résolue en temps, l'influence de la température du réseau, de la densité d'excitation et de la longueur d'excitation sur la dynamique des porteurs nous permettra de mieux comprendre les processus de transport et de relaxation des porteurs ainsi les effets des porteurs chauds et phonons chauds sur ces processus.

Au chapitre 5, nous procédons à la caractérisation structurale des trois structures laser à PQM par la diffraction de rayons X de haute résolution. Les résultats expérimentaux seront interprétés en parallèle avec ceux obtenus par des simulations. Nous déterminerons les compositions et les contraintes qui leur sont associées, de toutes les couches des régions actives dans les trois hétérostructures. Finalement, les résultats obtenus par cette technique nous permettront de dévoiler les caractéristiques structurales de nos échantillons, à savoir l'homogénéité des compositions, les fluctuations des largeurs des puits quantiques et des barrières, la qualité des interfaces et l'existence éventuelle de lacunes ou de dislocations dans les réseaux. De telles caractéristiques structurales affectent aussi bien le temps de vie des porteurs que l'efficacité de leur capture par les puits quantiques. Ainsi, la caractérisation structurale permettra une interprétation "éclairée" des résultats obtenus par des investigations optiques.

CHAPITRE 1

Lasers à semi-conducteurs

Problématique et objectifs de nos recherches

1.1 Introduction

Nous commençons ce chapitre par poser la problématique et énoncer les objectifs de nos recherches. Ensuite, nous décrivons brièvement certaines propriétés de structures laser à puits quantiques. Il s'agit essentiellement de mettre en relief les effets de confinement sur les énergies et sur le mouvement des porteurs. Nous abordons, de façon succincte, certains effets des contraintes en compression ou en tension. Les processus de relaxation des porteurs ainsi que leurs échelles de temps sont discutés. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous décrivons la réduction des taux de refroidissement des porteurs en termes d'effet d'écrantage et/ou de phonons chauds.

1.2 Choix des structures, problématique et objectifs de nos recherches

Dans un système de communication à grande échelle, l'information est véhiculée à l'aide de fibres optiques, milieu peu dispersif et peu absorbant des longueurs d'onde de 1.3 μm

et de 1.55 μm, respectivement. Avoir des lasers qui émettent à ces longueurs d'onde requiert la croissance de quaternaires d'InGaAsP. Cela justifie notre choix des structures laser à puits quantiques multiples émettant aux longueurs d'ondes sus-mentionnées. Ayant un gap direct, ce type d'hétérostructure est d'une grande utilité technologique. En effet, de telles structures peuvent être utilisées comme commutateurs de très hautes vitesses, sources de lumière (lasers) ou détecteurs aux longueurs d'ondes sus-mentionnées. De plus, les trois hétérostructures que nous avons considérées sont différentes des points de vue des contraintes compressives, des nombres et largeurs des puits quantiques. Cela nous permettra d'étudier l'influence de ces différences sur les caractéristiques structurales et sur les propriétés optiques et de transport de trois hétérostructures.

Utilisé dans un système de communication, un laser doit transformer, le plus rapidement possible et avec la meilleure précision possible, la modulation du courant qui lui est appliquée en un signal lumineux transitoire. Actuellement, on module des lasers à des taux de 10 GHz/s et on souhaite augmenter ce taux à des valeurs pouvant atteindre quelques dizaines de GHz/s. Une modulation d'une telle rapidité requiert un transfert efficace et rapide des porteurs depuis les contacts électriques jusqu'aux puits quantiques de la région active. Or, comme nous l'avons mentionné précédemment, il y a un écart énorme entre les prédictions théoriques et la réalité expérimentale en ce qui a trait à la largeur de bande de modulation et à la rapidité de composantes électroniques à base de semi-conducteurs. En effet, la théorie prédit qu'on pourrait atteindre des largeurs de

bande de modulation allant de 60 à 90 GHz alors que dans la réalité expérimentale, les meilleurs lasers possèdent des bandes de modulation variant de 20 GHz à 40 GHz (selon l'alliage considéré). Nous croyons que les performances des lasers à puits quantiques multiples sont essentiellement contrôlées par la dynamique des porteurs et sont souvent limitées par la vitesse de transfert des porteurs entre puits quantiques et barrières. La compréhension des facteurs qui limitent la fréquence de modulation et la connaissance détaillée des processus de relaxation, de transport et de capture sont alors d'une grande importance pour la conception de composants opto-électroniques ou photoniques ultra rapides. Nous nous proposons de contribuer à l'amélioration de notre compréhension de la dynamique des porteurs. En termes plus précis, nous nous fixons les objectifs qui suivent.

- Identifier des processus de relaxation des porteurs dans nos hétérostructures laser. Chaque processus est caractérisé par un temps. Plus la relaxation des porteurs est rapide, meilleur est le temps de réponse d'un laser à une modulation externe.
- Identifier des mécanismes physiques qui ralentissent la thermalisation des porteurs.
- Identifier des phénomènes qui réduisent l'efficacité de capture des porteurs par les puits quantiques. Ces phénomènes augmentent le courant seuil d'un laser et réduisent sa puissance.
- Évaluer les temps de transport, de relaxation, et de capture des porteurs. Des temps longs limiteraient la vitesse de réponse d'un laser à une modulation externe (information à véhiculer dans un réseau de fibres optiques).

- Compléter les investigations des propriétés optiques et de transport par une caractérisation structurale des trois lasers et corréler les résultats. Une inhomogénéité de la composition à travers la région active, des fluctuations des épaisseurs des puits quantiques ou des barrières et/ou une mauvaise qualité d'interface entre les couches affectent la longueur d'onde d'émission d'un laser, la largeur à mi-hauteur de la raie ainsi que la vitesse de transfert des porteurs entre les diverses couches.

De plus, des effets de porteurs chauds, de phonons chauds et de transfert de porteurs entre les vallées subsidiaires de la bande de conduction (Γ-L) seront investigués. La majorité des phénomènes, cités ci-dessus, posent une limite ultime aux performances d'un laser. La photoluminescence standard permet d'observer les propriétés statiques des matériaux semi-conducteurs. Cette technique peut donner des informations sur le produit des distributions des porteurs $f_e(E_e)\times f_h(E_h)$, où e désigne les électrons et h désigne les trous. La photoluminescence résolue en temps (de ~ 100 fs de résolution dans notre cas), comme son nom l'indique, permet de suivre l'évolution des distributions de porteurs dans le temps $f_e(E_e,t)\times f_h(E_h,t)$, où t désigne le temps. Cette technique permet donc d'étudier une dynamique ultra-rapide des porteurs. Quant à la caractérisation structurale, nous la ferons à l'aide de la diffraction de rayons X de haute résolution. Toutes ces techniques, ainsi que les structures étudiées, seront décrites avec de plus amples détails dans le chapitre suivant.

1.3 Bref rappel des effets de confinement

Les propriétés physiques des hétérostructures à semi-conducteurs sont très intéressantes pour de nombreuses applications technologiques. En effet, sans en donner une liste exhaustive, on peut citer leur usage dans les diodes laser, photomultiplicateurs, transistors à effet tunnel résonnant, transistors bipolaires à haute vitesse et photodiodes PIN. Dans notre contexte, une hétérostructure est constituée d'une région active semi-conductrice. Celle-ci peut contenir un ou plusieurs puits quantiques alternés avec des barrières. Typiquement, l'épaisseur d'une couche active varie du centième à quelques dixièmes de micromètre.

Lorsque l'épaisseur de la couche active, L_z, est de l'ordre de la longueur d'onde de Broglie ($\lambda = h/p \sim L_z$), des effets quantiques apparaissent. En effet, les technologies de croissance et de gravure actuelles permettent de restreindre le mouvement des porteurs dans plus d'une direction. La figure 1.1 en illustre un exemple. On y note l'altération profonde des énergies et des densités d'états due à la réduction, dans une ou plusieurs directions, de l'épaisseur de la région active.

Dans des structures à puits quantiques, le mouvement des porteurs dans la direction orthogonale à la couche active est restreint. L'énergie cinétique des porteurs, en mouvement dans cette direction, est quantifiée en niveaux discrets. Nous en représentons

quelques-uns à la figure 1.2. Par contre, les états énergétiques dans le plan de la couche sont continus. Les fonctions d'onde des électrons dans la bande de conduction et des trous dans la bande de valence sont obtenues en résolvant l'équation de Schrödinger. Pour un puits quantique de largeur finie L_z, les énergies accessibles aux porteurs sont de la forme :

$$E(n,k_x,k_y) = E_n + \frac{\hbar^2}{2m^*_{e,h}}\left[k_x^2 + k_y^2\right] \qquad (1)$$

avec $$E_n = \frac{\hbar^2}{2m^*_{e,h}}\left(\frac{n\pi}{L_Z}\right)^2 \qquad (2)$$

E_n désigne, tel qu'illustré à la figure 1.2 : E_{1C} ou E_{2C} ou E_{3C} pour les électrons, E_{1HH} ou E_{2HH} ou E_{3HH} pour les trous lourds, E_{1LH} ou E_{2LH} ou E_{3LH} pour les trous légers.

Les processus de recombinaison bande à bande, habituellement rencontrés dans les massifs, sont alors fondamentalement modifiés. Conformément à la règle de sélection ($\Delta n = 0$), les énergies des transitions observables sont données par :

$$\hbar\omega = E_g + E_{nC} + E_{nHH} \qquad (3)$$

ou

$$\hbar\omega = E_g + E_{nC} + E_{nLH} \qquad (4)$$

En changeant la largeur des puits et/ou la composition (x, y) dans des hétérostructures à puits quantiques multiples d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$, on peut couvrir sélectivement plusieurs longueurs d'ondes d'émission laser.

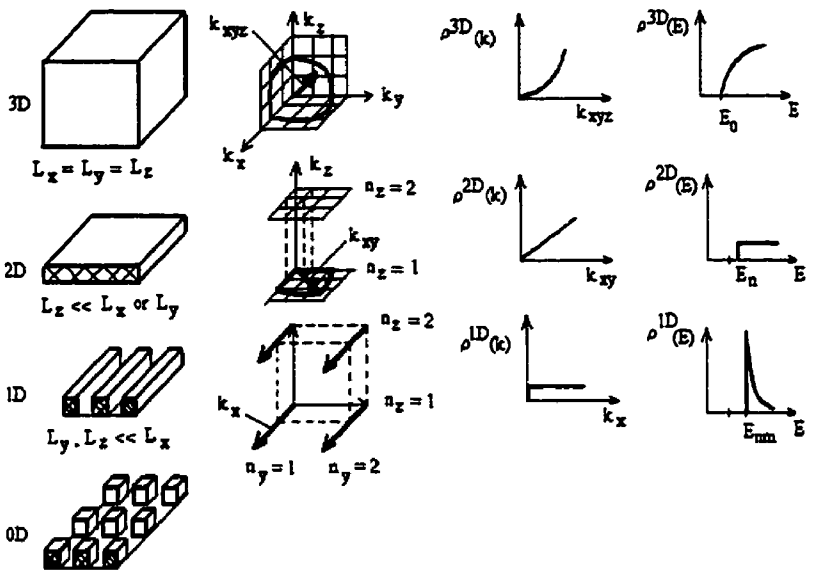


Figure 1.1 : Représentation des vecteurs d'onde et des densités d'états dans un semi-conducteur massif et dans des structures 2D, 1D et 0D. Mise en évidence des effets de confinement.

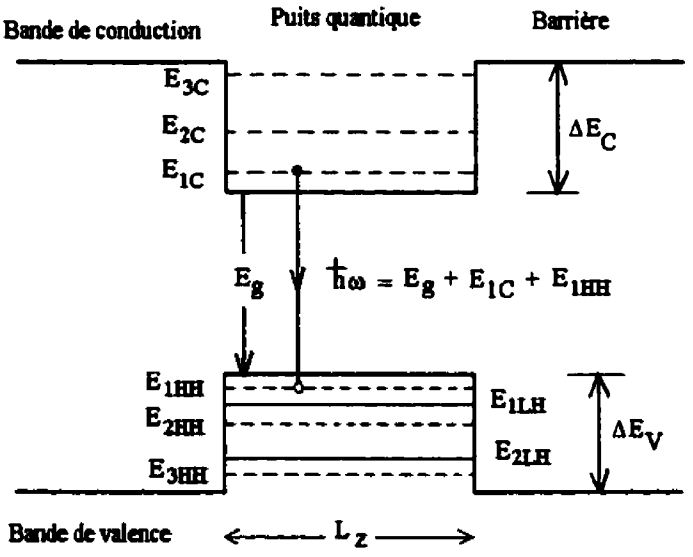


Figure 1.2 : Structure de bandes et transitions dans un puits quantique.

Le gain de ce type de lasers est de beaucoup plus élevé que celui des lasers à base de massifs conventionnels. En effet, on sait que les porteurs injectés (optiquement ou électriquement) sont, dans une large mesure, responsables des pertes internes.

Les puits quantiques, ne requérant qu'une faible injection, sont plus efficaces pour générer plus de puissance que les lasers conventionnels. En d'autres termes, les pertes sont moindres. Il en résulte une baisse du courant seuil. Un autre avantage des lasers à puits quantiques réside dans le fait qu'ils produisent un gain avec un changement d'indice moindre comparativement aux lasers à base de massifs. Le piaillement (chirp) dans les lasers à puits quantiques est alors moindre et la raie émise est plus étroite.

1.4 Effets d'un désaccord de maille

Contrainte en compression ou en tension

La croissance épitaxiale d'un cristal sur un autre est sans défauts si les paramètres de maille des deux cristaux ne diffèrent que de très peu. En présence d'un léger désaccord de réseau (< 0.1 %), les différents sites s'agencent à l'interface. Cet accord n'est possible que lorsque la contrainte à l'interface est élastique. Dans ce cas, chaque atome frontalier n'est que légèrement déplacé de sa position originale. En général, une bonne partie de l'énergie due à la contrainte est libérée suite à la formation d'une dislocation (absence d'atome de son site habituel) dans l'un ou l'autre des deux réseaux. Près de la dislocation, le cristal contient plusieurs liaisons pendantes qui joueront le rôle de centres

non radiatifs pour les électrons et les trous. La génération de dislocations dépend à la fois du désaccord de maille et de l'épaisseur de la couche épitaxiale. Pour un désaccord de mailles $\Delta a/a$ allant de -5×10^{-3} à 5×10^{-3}, Oe et collaborateurs [68] ont montré l'absence de dislocation dans une double hétérostructures d'InGaAsP d'épaisseur de 0.4 μm, épitaxiée sur un substrat d'InP orienté dans la direction [001]. L'augmentation de la valeur de la contrainte tolérable (sans dislocation) exige la réduction de l'épaisseur de la couche.

Dans certains lasers à puits quantiques, le paramètre de maille de la couche active diffère légèrement de ceux du substrat et de la couche couvercle (cap layer). Ces lasers sont qualifiés d'être sous contrainte. Les principaux avantages de la contrainte sont : (i) de baisser la densité du courant seuil, et (ii) de réduire la largeur spectrale de la raie laser. Les nouvelles performances, ainsi obtenues, sont dues à un changement dans la structure des bandes induit par le désaccord de maille. Dans un semi-conducteur à gap direct, une contrainte compressive ou de tension sépare les bandes des trous lourds et légers au point Γ de la zone de Brillouin, où la bande interdite passe par un minimum. La densité de porteurs injectés et la densité de courant nécessaires à l'obtention d'une valeur de gain donnée sont plus faibles dans un semi-conducteur sous contrainte que ceux correspondants au même semi-conducteur non contraint [69]. La réduction de ces paramètres est due, en partie, à la baisse de la masse effective des électrons sous l'effet de la contrainte. La figure 1.3 montre les structures de bandes d'un semi-conducteur sous contrainte.

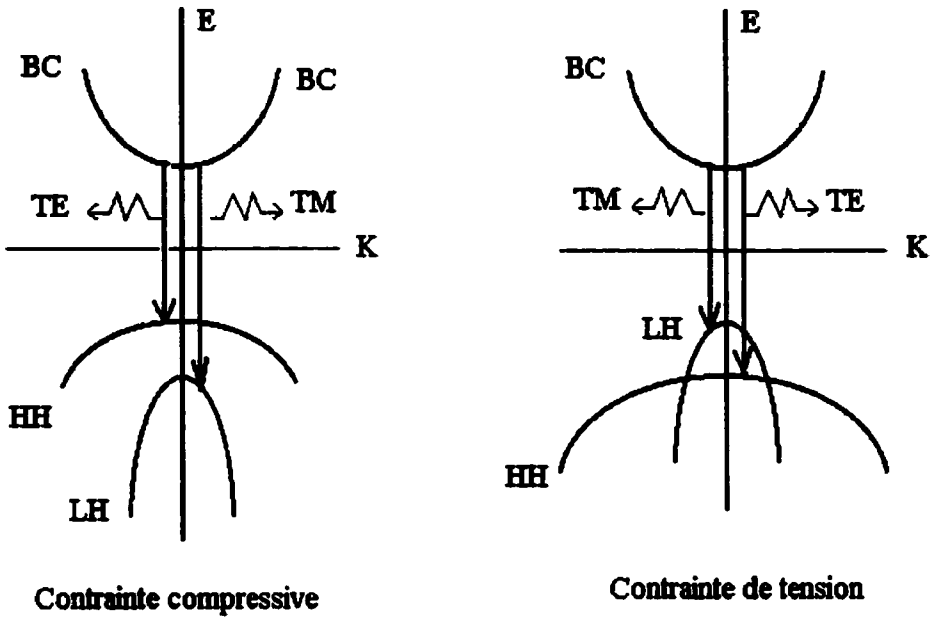


Figure 1.3 : Structures de bandes d'un semi-conducteur à gap direct sous contrainte. La lumière émise est polarisée TE ou TM selon que les électrons se recombinent avec les trous lourds ou légers respectivement.

1.5 Processus de relaxation des porteurs dans un composé III-V photo-excité

L'excitation d'un semi-conducteur III-V par une impulsion laser ultra courte, crée des paires électron-trou. En général, l'impulsion excite des électrons à partir des trois bandes de valence et les distributions d'électrons et de trous photo-excités sont déterminées par la largeur spectrale de l'impulsion et les dispersions des bandes de conduction et de valence.

On peut distinguer trois catégories majeures de processus de relaxation des porteurs : (1) ceux qui changent la quantité de mouvement nette du système de porteurs; (2) ceux qui

changent son énergie nette, et (3) ceux qui redistribuent énergie et quantité de mouvement parmi les porteurs. La première catégorie inclut la relaxation des porteurs suite à leurs interactions avec des phonons (optiques et acoustiques), des impuretés et des défauts. De plus, un désordre structural ou une imperfection d'interface dans une hétérostructure peuvent jouer un rôle important parmi les processus de relaxation des porteurs. Dans la seconde catégorie, le processus de relaxation dominant se manifeste par l'émission de phonons. Quant aux impuretés, elles ne peuvent infliger aux porteurs une perte considérable d'énergie à cause du grand écart entre leurs masses. La troisième catégorie de processus de relaxation inclut, d'une part, les recombinaisons Auger et l'absorption des porteurs libres. Ces processus, non radiatifs, augmentent l'énergie des porteurs. D'autre part, des processus tels que les recombinaisons radiatives et l'ionisation par impact peuvent changer l'énergie du système de porteurs de manière quantifiée (par quanta). Les collisions entre porteurs assureront la redistribution de l'énergie entre eux.

1.6 Constantes de temps caractéristiques de chaque processus

Des porteurs photo-excités traversent plusieurs régimes hors d'équilibre avant d'atteindre l'équilibre thermique. Les distributions de porteurs sont caractérisées par une vaste gamme de constantes de temps. En effet, ces temps caractéristiques de chaque régime, varient de la femtoseconde pour la relaxation de phase des états nouvellement peuplés, à la sous picoseconde et picoseconde pour que ces porteurs s'échangent de l'énergie et établissent une température commune, et jusqu'aux nanosecondes pour leur transport et

recombinaison. Le régime dit cohérent est celui où les états nouvellement peuplés (par l'impulsion laser) retiennent encore de la cohérence entre eux-mêmes et avec les champs électromagnétiques locaux. Le traitement approprié de ce régime fait appel à la mécanique quantique à N corps qui permet un traitement détaillé de la dynamique des porteurs. Cette technique utilise les fonctions de Green [70] ou les matrices densités [71,72] qui sont des fonctions spatiales ou spatio-temporelles de corrélation entre deux ou plusieurs particules. Quant au régime de la picoseconde et moins, où la relaxation se fait par émission de phonons LO, par interactions entre électrons (e-e), entre trous (t-t) et entre électrons et trous (e-t), il relève de la théorie semi-classique de transport. On parle alors de deux équations de Boltzmann, à une particule chacune, couplées et dépendantes du temps. Ces équations expriment l'évolution des fonctions de distributions des électrons et des phonons. Leurs solutions suffisent pour calculer les taux de refroidissement des électrons et des trous. Les divers processus de relaxation ainsi que leurs échelles de temps sont donnés par la figure 1.4 [51].

1.7 Notion de température effective des porteurs

Immédiatement après une excitation d'un semi-conducteur par une impulsion optique, des électrons et des trous acquièrent des énergies qui correspondent à des états hors de l'équilibre thermique. Des collisions du type porteur-porteur (e-e et t-t) assurent la redistribution de l'énergie à l'intérieur de chaque sous système (d'électrons ou de trous).

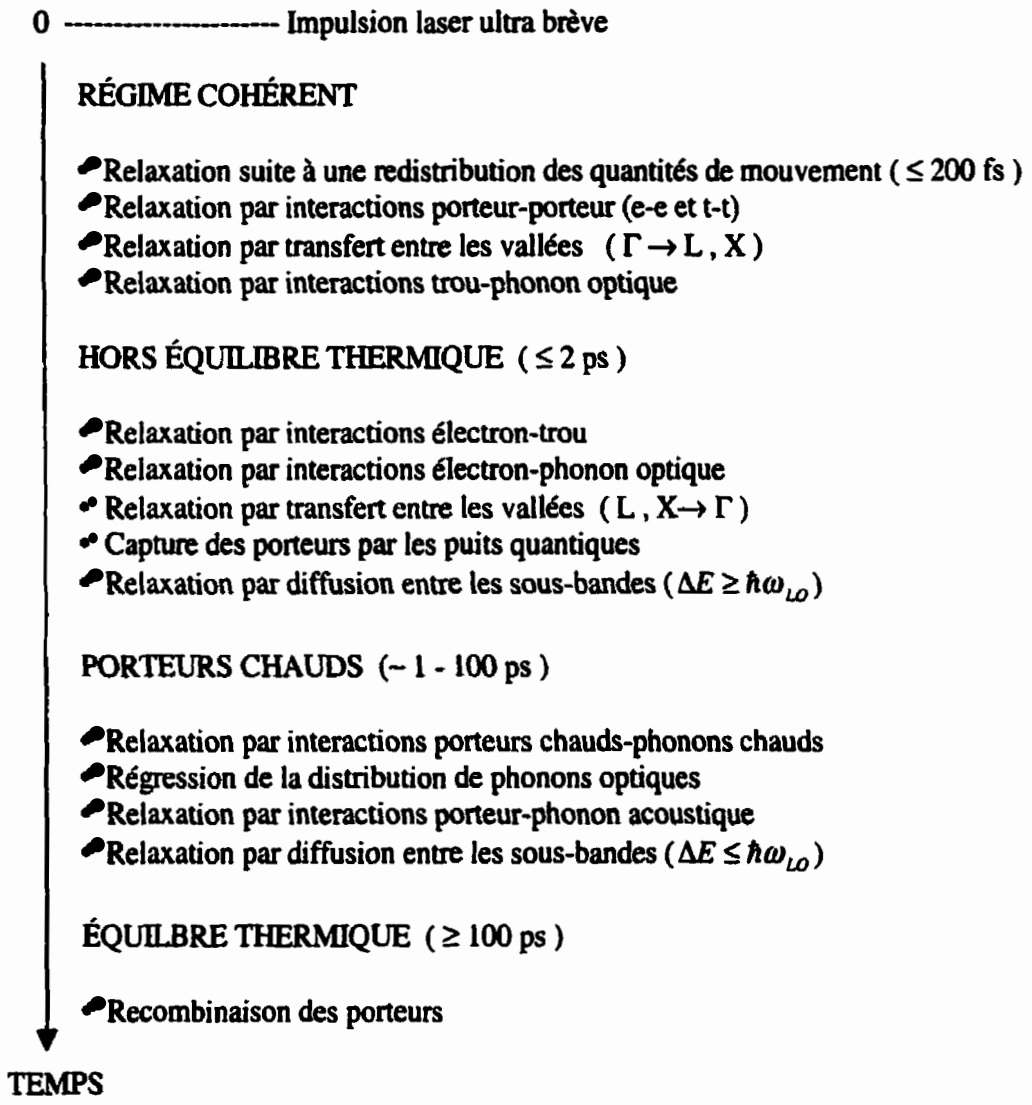


Figure 1.4 : Les différents régimes de retour à l'équilibre thermique d'un semi-conducteur photo-excité et leurs échelles de temps [51].

Les distributions d'électrons et de trous sont caractérisées respectivement par des températures différentes T_e et T_h, supérieures à celle du réseau, T_L. Par collisions entre électrons et trous, la température de l'ensemble des porteurs converge vers une température unique $T_e = T_h = T_C$ toujours supérieure à celle du réseau. Ensuite, les interactions entre les porteurs et les phonons amènent le système de porteurs à la même température que celle du réseau. Finalement, les porteurs se recombinent et le semi-conducteur retourne à l'équilibre thermique. La figure 1.5 illustre de manière simplifiée ce retour à l'équilibre thermique. Il faut noter que ces processus de relaxation, tels qu'illustrés à la figure 1.4, ne sont pas nécessairement séquentiels. Certains d'entre eux peuvent se chevaucher dans le temps.

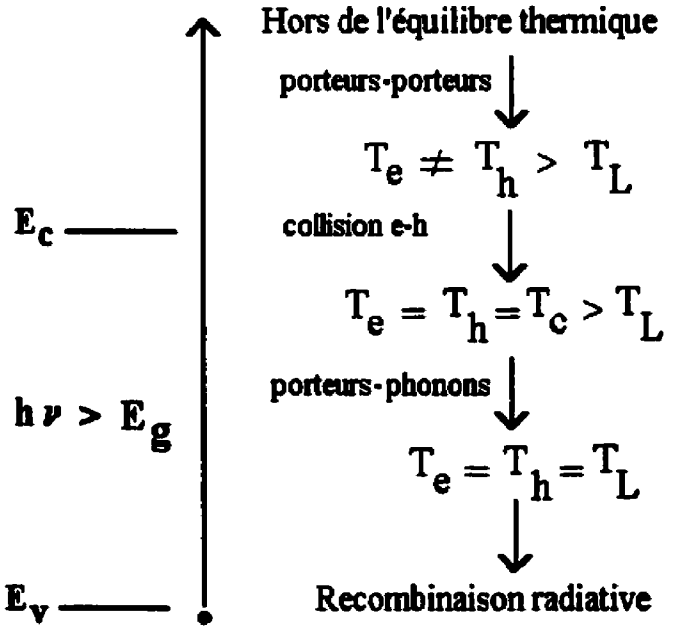


Figure 1.5 : Schéma simplifié du retour à l'équilibre d'un semi-conducteur photo-excité.

1.8 Taux de refroidissement des électrons

Pour de basses températures ($T_C < 40$ K), les énergies des porteurs étant inférieures à $\frac{1}{10}\hbar\omega_{LO}$), les interactions avec les phonons acoustiques sont dominantes. Les électrons sont alors couplés aux phonons acoustiques par deux champs, celui du potentiel de déformation et du potentiel piézo-électrique. À des températures plus élevées, les interactions avec les phonons optiques polaires deviennent dominantes.

1.8.1 Taux de refroidissement par interactions avec le potentiel de déformation

Dans le cas d'une bande parabolique simple, le taux de refroidissement par électron, moyenné sur une distribution de Fermi est donné par [73] :

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{ap} = -1.07\times10^{5}\frac{\left[m^{*}/m_0\right]^{5/2}\left[E_1(eV)\right]^{2}\left[T_C(K)\right]^{3/2}}{\rho(g/cm^{3})}\times\left[1-T_L/T_C\right]\frac{F_1(\eta)}{F_{1/2}(\eta)}\frac{eV}{\sec.} \qquad (5)$$

où E_1 est la constante du potentiel de déformation, m_0 est la masse de l'électron libre et m^* sa masse effective, ρ est la densité du matériau, T_C est la température de l'électron, T_L est celle du réseau et $F_j(\eta)$ désigne les intégrales de Fermi qui sont données par :

$$F_j(\eta) = \frac{1}{\Gamma(j+1)}\int_0^{\infty}\frac{\varepsilon^{j}\,d\varepsilon}{1+\exp(\varepsilon-\eta)} \qquad (6)$$

avec $\varepsilon=(E-E_C)/K_BT_C$, $\eta=(E_F-E_C)/K_BT_C$, K_B est la constante de Boltzmann et $\Gamma(j+1)$ est la fonction gamma. Pour les distributions non dégénérées, ($\eta<<0$), $F_j(\eta) \approx \exp(\eta)$ pour tous les j et alors le rapport des fonctions de Fermi vaut un.

1.8.2 Taux de refroidissement par interactions piézo-électriques

Pour ce type d'interaction, le taux de refroidissement par électron, moyenné sur une distribution de Fermi est donné par [73] :

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{pe} = -1.21\times10^{11} \frac{\left[m^*/m_0\right]^{3/2}\left[e_{14}(C/m^2)\right]^2\left[T_C(K)\right]^{1/2}}{K_s^2\rho(g/cm^3)} \times\left[1-T_L/T_C\right]\frac{F_0(\eta)}{F_{1/2}(\eta)}\frac{eV}{\text{sec.}} \quad (7)$$

où e_{14} est la constante de couplage piézo-électrique, m_0 est la masse de l'électron libre et K_S désigne la constante diélectrique statique. Pour les distributions non dégénérées, $\frac{F_0(\eta)}{F_{1/2}(\eta)} = 1$.

1.8.3 Taux de refroidissement par interactions avec des phonons optiques polaires

Au fur et à mesure que la température des porteurs augmente, le nombre d'électrons qui peuvent émettre un phonon optique ($\hbar\omega_{LO} \approx 30 \rightarrow 40\,\text{meV}$) devient de plus en plus significatif. À des températures $T_C > 40$ K, la grande énergie cédée par les électrons aux phonons optiques, fait que ce type d'interaction domine le processus de refroidissement. Dans le cas d'une distribution dégénérée d'électrons, le taux moyen de perte d'énergie par électron suite à ce type d'interaction est donné par [74,75] :

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{po} = -P_0 x_C^{1/2} \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{F_{1/2}(\eta)} \times$$

$$\{N_q \int f(\varepsilon)[1 - f(\varepsilon + x_C)] \sinh^{-1}(\varepsilon / x_C)^{1/2} d\varepsilon$$

$$-(N_q + 1) \int f(\varepsilon + x_C)[1 - f(\varepsilon)] \sinh^{-1}(\varepsilon / x_C)^{1/2} d\varepsilon \} \qquad (8)$$

avec $N_q = \frac{1}{e^{x_0} - 1}$, $f(\varepsilon) = \frac{1}{1 + \exp(\varepsilon - \eta)}$, $P_0 = eE_0 [2\hbar\omega_{LO} / m^*]^{1/2}$

$$E_0(V / m) = 1.89 \times 10^5 [\hbar\omega_{LO}(meV)] \frac{m^*}{m_0} [1/K_\infty - 1/K_s],$$

$x_C = \frac{\hbar\omega_{LO}}{K_B T_C}$ et $x_0 = \frac{\hbar\omega_{LO}}{K_B T_L}$ où $\hbar\omega_{LO}$ est l'énergie du phonon optique longitudinal et K_∞ est la constante diélectrique aux fréquences optiques.

Pour une distribution non dégénérée, l'expression précédente se simplifie à :

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{pe} = -P_0 \frac{\left[e^{x_0 - x_C} - 1\right]}{\left[e^{x_0} - 1\right]} \frac{[x_C/2]^{1/2} e^{x_C/2} K_0(x_C/2)}{\sqrt{\pi/2}} \qquad (9)$$

où $K_0(x)$ est la fonction de Bessel modifiée, d'ordre zéro.

1.8.4 Refroidissement par interactions avec des phonons optiques non polaires

En plus des processus de relaxation sus-mentionnés, des électrons peuvent aussi interagir avec des phonons optiques via le potentiel de déformation optique. Ce type de relaxation

est communément appelé : relaxation par phonons optiques non polaires. Toutefois, dans les III-V et leurs alliages, ce type d'interaction n'est pas très important pour des électrons au fond de la vallée centrale. En effet, les fonctions d'onde pour ces électrons sont du type s, et l'élément de matrice est nul pour des raisons de symétrie. Par contre, des électrons excités à plus hautes énergies peuvent avoir une composante du type p dans leur fonction d'onde. Par conséquent, des interactions entre électrons et phonons optiques non polaires ou des transferts entre Γ, L et/ou X peuvent contribuer aux processus de relaxation.

Le taux de perte d'énergie total est la somme de tous les taux discutés précédemment. Pour des distributions non dégénérées d'électrons et de trous, l'énergie moyenne par paire électron-trou est de $3K_BT_C$. Si, suite à une excitation par impulsion laser, T_0 [=$T_C(0)$] représentait la température des porteurs à l'instant t = 0, alors $T_C(t)$ serait donnée par :

$$T_C(t) = T_0 - \frac{1}{3K_B}\int_0^t C\left|\left\langle\frac{dE}{dt}\right\rangle\right|dt \qquad (10)$$

où C est un facteur qui tient compte de la réduction du taux de refroidissement sous l'effet d'écrantage ou de phonons chauds.

1.9 Réduction du taux de refroidissement des porteurs

Effet d'écrantage ou de phonons chauds?

Au début des années 1980, plusieurs mesures sur des systèmes quasi-2D, rapportaient des taux de refroidissement beaucoup plus réduits comparativement aux valeurs théoriquement prédites pour les semi-conducteurs massifs [76]. Alors que d'autres rapportaient des taux comparables [77]. Depuis lors, un intérêt grandissant a été accordé aux calculs de ce taux de refroidissement [78-84]. La conclusion générale de ces études était que l'effet dimensionnel était très faible et qu'un taux de refroidissement fortement réduit pouvait être noté aussi bien pour les massifs que pour les systèmes quasi-2D sous haute densité d'excitation. Une première tentative d'explication de la réduction du taux de refroidissement, fut l'écrantage des interactions électron-LO-phonon par la dense population de porteurs libres photo-excités [85]. Ensuite, on reconnaissait que l'écrantage, à lui seul, ne pouvait expliquer une telle (grande) réduction des taux de refroidissement et on proposait des modèles évoquant les phonons chauds [86-89]. Selon ces modèles, les porteurs émettent un grand nombre de phonons au cours de leur relaxation. Considérant la durée de vie relativement grande de ces phonons, ces derniers sont réabsorbés par les porteurs et le taux de refroidissement est alors réduit. Ce phénomène réduit les performances des composants opto-électroniques.

1.10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que les états électroniques dans les puits quantiques, appelés états confinés, sont différents des états dans les massifs. Les bandes de conduction et de valence se subdivisent en plusieurs sous bandes sous l'effet du confinement. Pour des barrières de hauteur finie, les fonctions d'onde des états confinés pénètrent dans ces barrières jusqu'à une certaine profondeur. Par contre, pour des barrières "infiniment" hautes, les fonctions d'onde s'annulent à l'interface puits quantique/barrière. De plus, les puits sont considérés indépendants dans le cas où les barrières seraient très épaisses. En diminuant l'épaisseur des barrières, les fonctions d'onde dans deux puits quantiques adjacents se chevauchent et donnent naissance à des mini-bandes. Les propriétés de transport sont fondamentalement modifiées comparativement à celles des massifs.

Nous avons revu certains processus, rapides et complexes, de relaxation des porteurs. Ceci nous a amené à décrire la notion de température effective des porteurs. Une excitation à forte énergie ou de forte intensité, crée une grande population de porteurs chauds. Très souvent, les interactions porteur-porteur jouent un effet d'écran aux interactions électron-phonon optique. De plus, au cours de la relaxation, les porteurs émettent beaucoup de phonons et la population de ces derniers est amplifiée. Il en résulte que les porteurs peuvent en réabsorber. C'est le phénomène de phonons chauds.

L'écrantage des interactions électron-phonon optique et le phénomène de phonons chauds ralentissement les processus de relaxation des porteurs. Cela affecte les performances des lasers à puits quantiques. Afin de mieux comprendre les interactions des processus de relaxation et leurs influences sur les propriétés optiques et de transport des hétérostructures laser à puits quantiques multiple, une étude détaillée de dynamique des porteurs est nécessaire. Ce genre d'étude fait l'objet des prochains chapitres.

CHAPITRE 2

Structures à puits quantiques multiples étudiées

Techniques expérimentales utilisées

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous décrivons d'abord les structures à puits quantiques multiples que nous avions étudiées. Ensuite, nous présentons les techniques expérimentales que nous avions utilisées. Il s'agit essentiellement de la photoluminescence standard (PL), photoluminescence résolue dans le temps (PLRT) et la diffraction de rayons X de haute résolution (DRXHR). Pour la PLRT, l'optimisation du signal obtenu à la somme des deux fréquences, le réglage de l'origine des délais, et les sources de bruit sont discutés.

2.2 Description des structures à puits quantiques multiples

Les trois structures à puits quantiques multiples d'InGaAsP que nous avions étudiées sont libellées A, B et C. Elles sont schématisées par les figures 2.1 et 2.2. La croissance de ces structures a été effectuée par épitaxie aux organo-métalliques en phase vapeur (MOCVD) sur substrat n^+-InP dopé 2×10^{18} cm^{-3}. Pour la structure A, on retrouve d'abord une couche tampon d'InP de 1.5 µm d'épaisseur (non montrée sur les figures 2.1

et 2.2), puis une première région de confinement en escalier du type N (4×10^{17} cm^{-3}). La région active de la structure A est constituée de quatre puits quantiques d'InGaAsP d'une épaisseur de 55 Å chacun, non dopés et sous contrainte compressive (1.5 %). Ces puits sont entourés de barrières d'InGaAsP dont l'épaisseur est de 100 Å chacune, non contraintes et dopées P (4×10^{17} cm^{-3}). La bande interdite des barrières est de 0.991 eV. Sur la région active, on retrouve une seconde région de confinement d'InGaAsP, dopée P (4×10^{17} cm^{-3}). La structure se termine par une couche couvercle d'InP non dopé, d'une épaisseur de 700 Å.

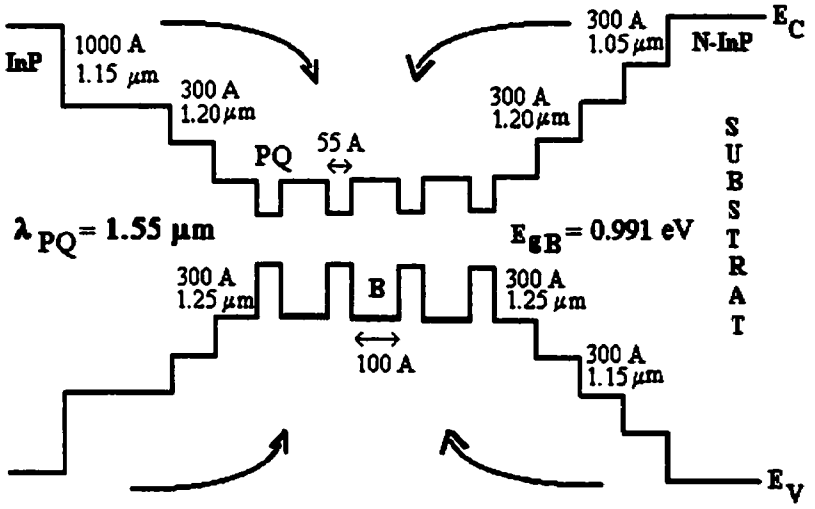


Figure 2.1 : Schéma de la structure A. Diode laser à quatre puits quantiques multiples émettant à 1.55 μm à 300 K.

Pour les structures B et C, on retrouve une couche tampon de 1.5 μm d'épaisseur (non montrée sur la figure 2.2), puis une couche de confinement d'InGaAsP de type N (4×10^{17} cm^{-3}) et dont la largeur de la bande interdite est de 1.239 eV à 300 K. Les régions

actives de B et de C sont composées de huit et de douze puits quantiques d'InGaAsP, respectivement. Ces puits, sous contrainte compressive de 1% et non dopés, ont une épaisseur de 35 Å chacun. Les barrières sont des couches d'InGaAsP de type P (4×10^{17} cm^{-3}), non contraintes, ayant une épaisseur de 100 Å chacune et dont la largeur de la bande interdite est de 1.126 eV à 300 K. Par-dessus les régions actives, on retrouve une seconde couche de confinement d'InGaAsP dopées P (4×10^{17} cm^{-3}). Ces structures se terminent par une couche couvercle d'InP, dopée P (4×10^{17} cm^{-3}) et dont l'épaisseur est de 700 Å. Les épaisseurs des couches de confinement (exprimés en Å) , ainsi que les longueurs d'onde (exprimés en μm) des bandes interdites correspondantes sont données sur les figures 2.1 et 2.2.

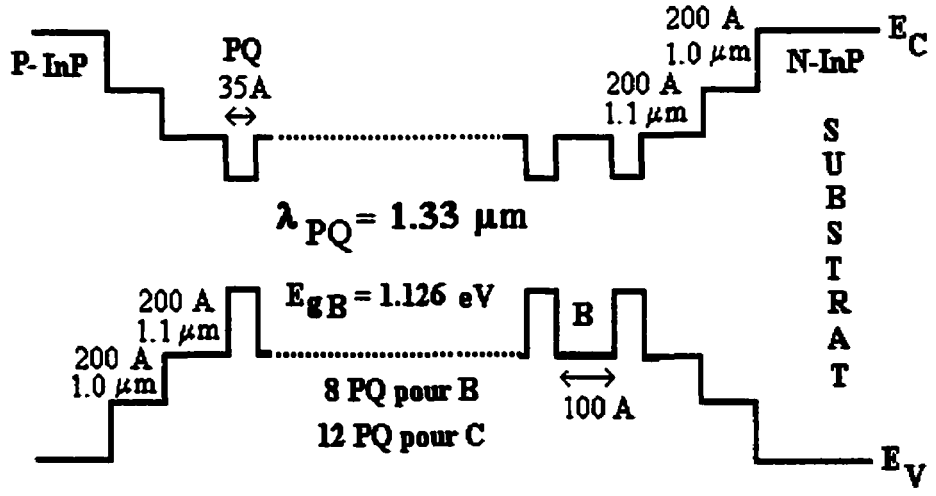


Figure 2.2 : Schéma des structures B et C. Diodes laser à huit et douze puits quantiques multiples respectivement, émettant à 1.3 μm à 300 K.

Ces structures ont été utilisées par Nortel pour fabriquer des diodes laser à réseau distribué (DFB) à couplage par gain. Leurs caractéristiques, telles qu'obtenues par Lu et collaborateurs [90, 91], Li et collaborateurs [92], Makino et Lu [93], sont très

intéressantes. En effet, ces auteurs ont rapporté pour nos structures une température d'opération allant jusqu'à 100 °C, une température caractéristique (T_0) quasi-infinie, un rendement à mode unique de 90 %, une suppression du mode secondaire de 55 dB, une puissance de 50 mW et une bande passante de modulation de 22 GHz.

2.3 Principes de la photoluminescence résolue dans le temps

Conversion vers les hautes fréquences

Ce type de PLRT est basé essentiellement sur la génération d'une somme de deux fréquences. L'interprétation physique de ce phénomène est assez directe. Le faisceau laser, à la pulsation ω_P et la luminescence émise par l'échantillon, à la pulsation ω_{IR}, interagissent dans un cristal non linéaire et génèrent une polarisation non linéaire de second ordre $P^{(2)}(\omega_S = \omega_P + \omega_{IR})$. Cette polarisation, résultante d'une collection de dipôles oscillants, agit comme source de radiation à la pulsation $\omega_S = \omega_P + \omega_{IR}$. En général, cette source peut rayonner dans toutes les directions. Cependant, l'intensité de la radiation émise dépend, à travers un facteur de phase, de la distribution spatiale de $P^{(2)}(\omega_S = \omega_P + \omega_{IR})$.

L'équation d'onde qui gouverne sa propagation dans un milieu non linéaire de second ordre est donnée par [94] :

$$\left[\nabla\times(\nabla\times) - \frac{\omega_i^2}{c^2}\varepsilon(\omega_i)\bullet\right]E_i(k_i,\omega_i,z,t) = \frac{4\pi\omega_i^2}{c^2}P^{(2)}(\omega_i,z,t) \qquad (2.1)$$

Tous les symboles et paramètres y apparaissant ont les désignations habituelles. Chaque onde d'indice i = S, P ou IR est gouvernée par cette même équation. Chaque champ peut être décomposé en deux parties, longitudinale et transverse. L'équation ci-haut se réécrit alors

$$\nabla^2 E_{\perp}(\omega_i, z, t) + \frac{\omega_i^2}{c^2}\left[\varepsilon(\omega_i)\cdot E(\omega_i, z, t)\right]_{\perp} = -\frac{4\pi\omega_i^2}{c^2} P_{\perp}^{(2)}(\omega_i, z, t) \qquad (2.2)$$

$$\nabla\cdot\left[E_{//}(\omega_i, z, t) + 4\pi P_{//}^{(1)}(\omega_i, z, t) + 4\pi P_{//}^{(2)}(\omega_i, z, t)\right] = 0 \qquad (2.3)$$

La figure 2.3 schématise les divers vecteurs d'onde impliqués dans une opération de somme de fréquences réalisée par un cristal non linéaire.

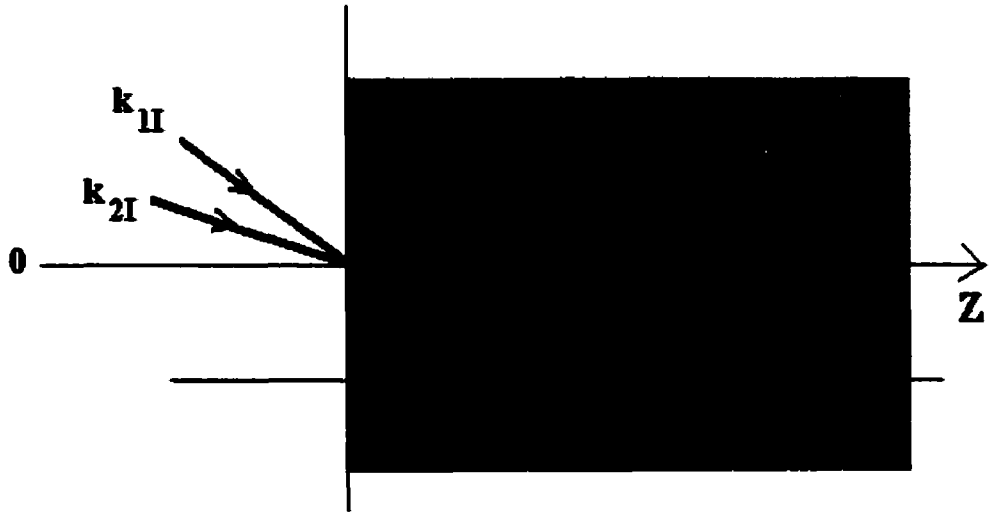


Figure 2.3 : Description des vecteurs d'ondes impliqués dans un processus de génération de somme de fréquences.

Sur cette figure, nous désignions par θ_n (n = 1I, 2I, 1T, 2T, ou S; I = incident, T = transmis et S = somme) les angles entre les vecteurs d'ondes $\mathbf{k}_n$ et la direction 0Z. Les lettres I et T désignent incident et transmis respectivement.

En écrivant les champs incidents et la polarisation de second ordre sous la forme :

$$E(\omega_i) = \xi_i(z)\exp[i(k_i \cdot r - \omega_i t)] \qquad (2.4)$$

$$P^{(2)}(\omega_S) = \wp_S^{(2)} \exp[i(k_S \cdot r - \omega_S t)] \qquad (2.5)$$

Les solutions aux équations (2.2) et (2.3) pour le champ $\mathbf{E}_S(k_S, z, t)$ dans l'approximation de l'enveloppe à variation lente, nous permettent d'obtenir l'intensité du signal généré à la fréquence $\omega_S = \omega_P + \omega_{IR}$. Cette intensité, moyennant quelques autres approximations, est donnée par :

$$I_S(z) = \frac{2\pi\omega_S^2}{c\sqrt{\varepsilon(\omega_S)\cos^2\theta_S}} \left\| \wp_{S\perp}^{(2)} \right\|^2 \left[\frac{\sin\left(\Delta k \cdot z/2\right)}{\Delta k \cdot z/2} \right]^2 z^2 \qquad (2.6)$$

avec $\Delta k = \vec{z}\,\Delta k = k_{1T} + k_{2T} - k_S$

La valeur de l'intensité $I_S(z)$ atteint son maximum pour $\Delta k = 0$, c'est à dire, $k_{1T} + k_{2T} = k_{3s}$. Cette relation indique que la somme des fréquences est plus efficace dans la direction de k_S, dite direction d'accord de phase. Nous y reviendrons.

Des photons à la somme des deux fréquences ne sont générés que pendant la durée où le faisceau "pompe" est présent dans le cristal. Ainsi, ce mélange de fréquences fournit une résolution temporelle de l'ordre de la largeur de l'impulsion. L'évolution temporelle de la luminescence, telle qu'illustrée par la figure 2.4, peut être obtenue en faisant varier le délai infligé au faisceau "pompe". La résolution temporelle de la technique est limitée par la largeur de l'impulsion laser.

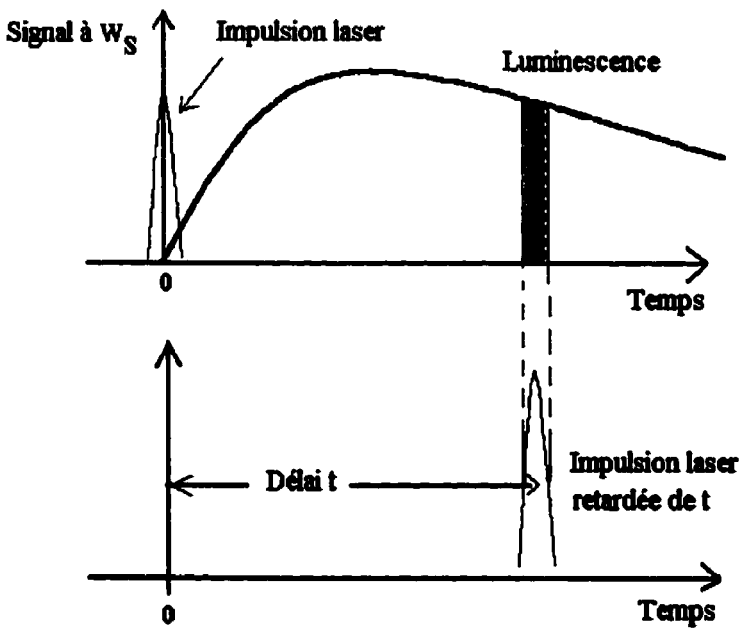


Figure 2.4 : Illustration du processus de génération de la somme des fréquences. La résolution du système dépend de la largeur de l'impulsion.

Par ailleurs, la conversion des fréquences n'est efficace que lorsque la condition d'accord de phase est satisfaite. En général, ceci n'a lieu que pour une bande très étroite, centrée sur une longueur d'onde déterminée par l'angle d'accord de phase θ_{pm}. Par conséquent, à un délai donné, le spectre peut être obtenu en variant l'orientation angulaire du cristal non linéaire.

2.3.1 Condition d'accord de phase

La conversion vers les hautes fréquences (ω_S) n'est efficace que lorsque les conditions de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement sont satisfaite. Ces conditions se traduisent par les équations suivantes, respectivement [95].

$$\omega_{IR} + \omega_P = \omega_S \tag{2.7}$$

$$\vec{k}_{IR} + \vec{k}_P = \vec{k}_S \tag{2.8}$$

Pour un cristal non linéaire anisotrope, l'indice n_i correspondant à une énergie $h\nu_i$, suivant la direction $\vec{k}_S = \vec{k}_S(\theta, \phi)$ est donné par :

$$\frac{\sin^2\theta\cos^2\phi}{\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n_{x,i}^2}} + \frac{\sin^2\theta\sin^2\phi}{\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n_{y,i}^2}} + \frac{\cos^2\theta}{\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n_{z,i}^2}} = 0 \tag{2.9}$$

La direction de propagation de l'onde à la somme des deux fréquences est donnée par son vecteur d'onde $\vec{k}_S = \vec{k}_S(\theta, \phi)$ tel qu'illustré par la figure 2.5.

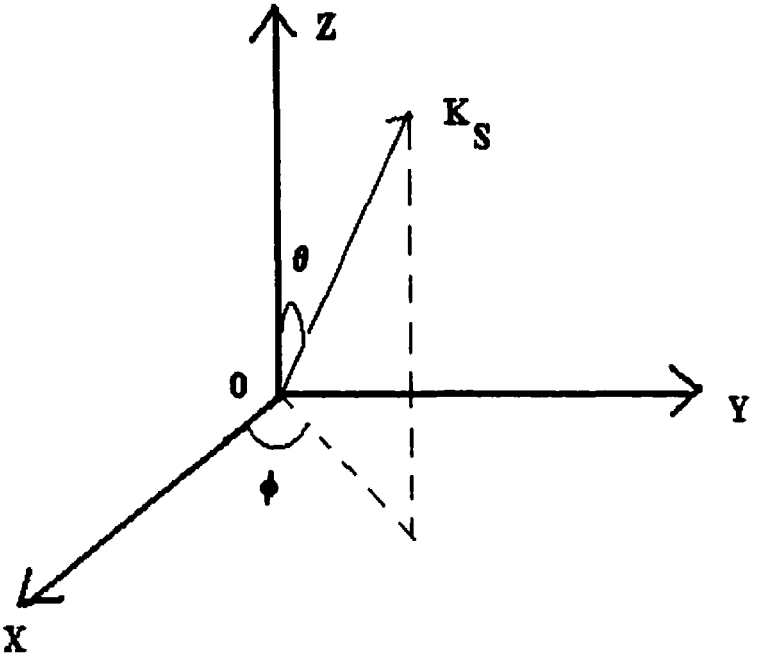


Figure 2.5 : La direction de k_S est repérée par les coordonnées (θ, ϕ).

Pour un cristal uniaxial, dont l'axe optique est confondu avec Z, on a : $n_x = n_y = n_o$ et $n_z = n_e$, l'équation (2.9) se réduit à :

$$\frac{1}{n_i^2} = \frac{\sin^2\theta}{n_{e,i}^2} + \frac{\cos^2\theta}{n_{o,i}^2} \qquad (2.10)$$

Pour une somme de fréquences du type I, c'est à dire, IR et pompe sont parallèlement polarisés (tous deux O, par exemple), l'angle de l'accord de phase est donné par :

$$\sin^2 \theta_{pm} = \frac{\left[1/n_S^2(\theta_{pm})\right] - \left[1/n_{o,S}^2\right]}{\left[1/n_{e,S}^2\right] - \left[1/n_{o,S}^2\right]} \qquad (2.11)$$

où

$$n_S(\theta_{pm}) = n_{o,IR}\frac{\lambda_S}{\lambda_{IR}} + n_{o,P}\frac{\lambda_S}{\lambda_P} \qquad (2.12)$$

où $n_S(\theta_{pm})$ est l'indice de réfraction à la longueur d'onde du signal (λ_S) se propagent à θ_m par rapport à l'axe optique du cristal non linéaire; c est la vitesse de la lumière dans le vide; $n_{o,IR}$ et $n_{o,P}$ sont les indices de réfraction du cristal non-linéaire à la longueur d'onde de la luminescence (λ_{IR}) et à celle du laser (λ_P), respectivement. Les indices o et e désignent des ondes du type ordinaire et extraordinaire, respectivement.

2.3.2 Efficacité quantique de l'opération de conversion vers les hautes fréquences

L'efficacité quantique dans une opération de conversion vers les hautes fréquences, avec accord de phase, s'obtient par la résolution du système à trois équations couplées $E_i(w_i,z,t)$, où i = p, IR ou S [94]. En utilisant des conditions aux frontières appropriées et en supposant qu'uniquement une faible partie de la puissance à λ_P est transférée au signal

à λ_S (faible appauvrissement de la puissance pompe), l'efficacité quantique est donnée par :

$$\eta_q(\Delta k = 0) = \frac{2\pi^2 d_{eff}^2 L^2 \left(P_p / A \right)}{c\varepsilon_0^3 \lambda_{IR} \lambda_S n_{O,IR} n_{O,P} n_S(\theta_{pm})} \qquad (2.13)$$

où P_p est la puissance du laser "pompe"; A est la section du faisceau IR au niveau du cristal non linéaire; c est la vitesse de la lumière dans le vide, ε_0 est la permittivité du vide; d_{eff} est un coefficient effectif du cristal non linéaire, et L est la longueur du cristal non linéaire.

2.4 Certains facteurs limitants l'efficacité quantique de la conversion

Certains facteurs peuvent limiter l'efficacité quantique de conversion vers les hautes fréquences. Dans ce qui suit nous en citerons quelques-uns. Si de l'absorption à la longueur d'onde λ_P ou λ_S était importante, la longueur effective d'interaction serait réduite et l'efficacité quantique diminuerait. On s'attend à ce que la puissance du signal à la somme des fréquences augmente avec l'intensité des impulsions de pompage. Ce qui est vrai dans une certaine mesure. En effet, une forte focalisation du faisceau pompe devrait augmenter l'efficacité quantique jusqu'à atteindre un niveau de saturation. Cependant, une forte focalisation peut endommager le cristal non linéaire.

2.4.1 L'angle exprimant l'écart entre la propagation de l'énergie et la normale à l'onde

On peut avoir un certain petit angle entre la direction de propagation de l'énergie (celle des rayons lumineux constituants le faisceau) et la normale à l'onde. Ce phénomène, connu sous le nom de "walk-off" réduit l'efficacité quantique du signal obtenu par conversion vers les hautes fréquences. L'angle entre les deux directions sus-mentionées est appelé angle de déviation. Pour une conversion du type O + O → E (ordinaire + ordinaire → extraordinaire), cet angle est donné par :

$$\Delta\theta_{wo} = Arc\tan g\left[\frac{n_S^2(\theta_{pm})\sin(2\theta_{pm})}{2}\left(\frac{1}{n_{e,S}^2}-\frac{1}{n_{o,S}^2}\right)\right] \qquad (2.14)$$

Dans ce cas, le faisceau S subit un déplacement lors de son émergence du cristal non linéaire. Dans certains cas, autres que celui-ci, l'écart entre les directions de propagation des deux signaux (P et IR) réduit leur recouvrement causant ainsi, une diminution de l'efficacité quantique.

2.4.2 Qualité du faisceau pompe

Un faisceau à plusieurs modes peut contenir des spots chauds. Ces derniers augmentent l'effet du "walk-off". Les meilleurs faisceaux sont ceux du type TEM_{00}. Finalement, la

qualité du cristal non linéaire est d'une importance primordiale. En effet, une non-uniformité dans la température le long du cristal ou une inhomogénéité dans son indice de réfraction peuvent empêcher la satisfaction de la condition d'accord de phase.

2.4.3 La largeur spectrale

L'efficacité quantique diminue assez rapidement dès que la condition d'accord de phase n'est pas pleinement satisfaite. En effet, ses variations avec Δk sont données par la formule :

$$\eta_q(\Delta k) = \eta_q(\Delta k = 0)\frac{\sin^2(L\Delta k)}{(L\Delta k)^2} \qquad (2.15)$$

où L est la longueur du cristal non linéaire. Sachant que $\sin^2(x)/x = 0.5$ lorsque $x = \pm 1.39$, la largeur à mi-hauteur (FWHM) est donnée par :

$$\Delta(h\nu_{IR}) = \frac{5.56}{L}\left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial(\Delta\nu_{IR})}\right)^{-1} \qquad (2.16)$$

Dans le cas d'une somme de fréquences du type O + O → E, l'expression ci-haut se réduit à :

$$\Delta(h\nu_{IR})(meV) = \frac{3.66\times10^{-12}}{L(cm)\left[\gamma_S(s/cm) - \gamma_{IR}(s/cm)\right]} \qquad (2.17)$$

où les γ_i (i = S ou IR) sont donnés par :

$$\gamma_{IR} = \frac{1}{c}\left[n_{o,IR} - \lambda_{IR}\left.\frac{\partial n_{o,IR}}{\partial\lambda}\right|_{\lambda=\lambda_{IR}}\right] \qquad (2.18)$$

$$\gamma_S = \frac{1}{c}\left[n_S(\theta_{pm}) - \lambda_S\left.\frac{\partial n_S(\theta_{pm})}{\partial\lambda}\right|_{\lambda=\lambda_S}\right] \qquad (2.19)$$

Les différents termes ont les mêmes significations que précédemment.

2.4.4 Différence entre les vitesses de groupe

Dans les techniques de mélange d'ondes, la différence entre les vitesses de groupe des ondes mélangées impose une restriction de la résolution temporelle. Dans l'opération de conversion vers les hautes fréquences, la différence de vitesses de groupe entre P ("pompe") et la luminescence IR détériore la résolution ultime qu'on pourrait atteindre par cette technique. Dans le cas d'une somme de fréquences du type O + O → E, l'élargissement temporel induit dans le cristal non linéaire, dû à des vitesses de groupe différentes, est donné par :

$$\Delta t(s) = L(cm)\left[\gamma_P(s/cm) - \gamma_{IR}(s/cm)\right] \qquad (2.20)$$

où γ_P est donné par :

$$\gamma_P = \frac{1}{c}\left[n_{o,P} - \lambda_P \left.\frac{\partial n_{o,P}}{\partial \lambda}\right|_{\lambda=\lambda_P} \right] \qquad (2.21)$$

L'effet d'une différence de vitesses de groupe sur la résolution temporelle est assez important. Pour s'en convaincre, il suffit d'évaluer γ_P et γ_{IR} à partir des expressions des indices de réfraction [96-98].

2.4.5 Angle d'acceptance

L'efficacité quantique donnée par l'équation (2.15) est établie pour un accord de phase supposé parfait. Cependant, un léger changement de la fréquence IR ou de son angle d'incidence conduit à une déviation appréciable de la condition accord de phase parfait. Sachant que la luminescence IR est émise dans toutes les directions, l'angle de son acceptation par le cristal non linéaire est alors d'une importance primordiale dans les processus de somme de fréquences. Pour un accord de phase dans une géométrie colinéaire, il a été démontré [99] que l'angle d'acceptance pour une incidence contenant l'axe optique du cristal non linéaire est plus petit que celui correspondant à une incidence qui lui est perpendiculaire. Cependant, ces deux angles peuvent être amenés à la presque égalité en utilisant la configuration non colinéaire [99]. Dans ce cas, l'angle d'acceptance est donné par :

$$\Delta\phi = \frac{2.78 n_{o,IR} \lambda_{IR}}{L\left[1 - \left(n_{o,IR}\lambda_S\right) / \left(n_S(\theta_{pm})\lambda_{IR}\right)\right]} \qquad (2.22)$$

2.5 Montage expérimental de photoluminescence résolue en temps

La figure 2.6 représente le montage de photoluminescence résolue en temps (PLRT) que nous avons utilisé. Un laser argon pompe un laser titane-saphir. Ce dernier génère, à un taux de répétition de ~ 82 MHz, des impulsions ultra-brèves d'une largeur temporelle de ~ 100 fs.

À la sortie du laser Ti-saphir, le faisceau constitué d'impulsions ultra brèves ($h\nu_p$), est divisé en deux. L'un d'eux est focalisé sur l'échantillon; ce dernier émet un photon dans l'infrarouge ($h\nu_{IR}$). L'autre ($h\nu_p$) parcourt un chemin optique pouvant subir un délai ajustable. Des filtres optiques et des polariseurs ont été utilisés pour contrôler les intensités lumineuses dans chacun des bras. La luminescence provenant de l'échantillon ($h\nu_{IR}$) est recueillie par des réflecteurs paraboliques. Cette luminescence et le faisceau ($h\nu_p$) traversant la ligne à délai, sont focalisés sur un cristal non linéaire dont l'axe optique est convenablement orienté. Le signal généré, à la somme des deux fréquences, est orienté vers la fente d'entrée du spectromètre. Ce dernier disperse le signal, le cas

échéant, puis le transmet vers un photomultiplicateur (PM) pour être amplifié. Le signal final est recueilli par un compteur de photons (CP).

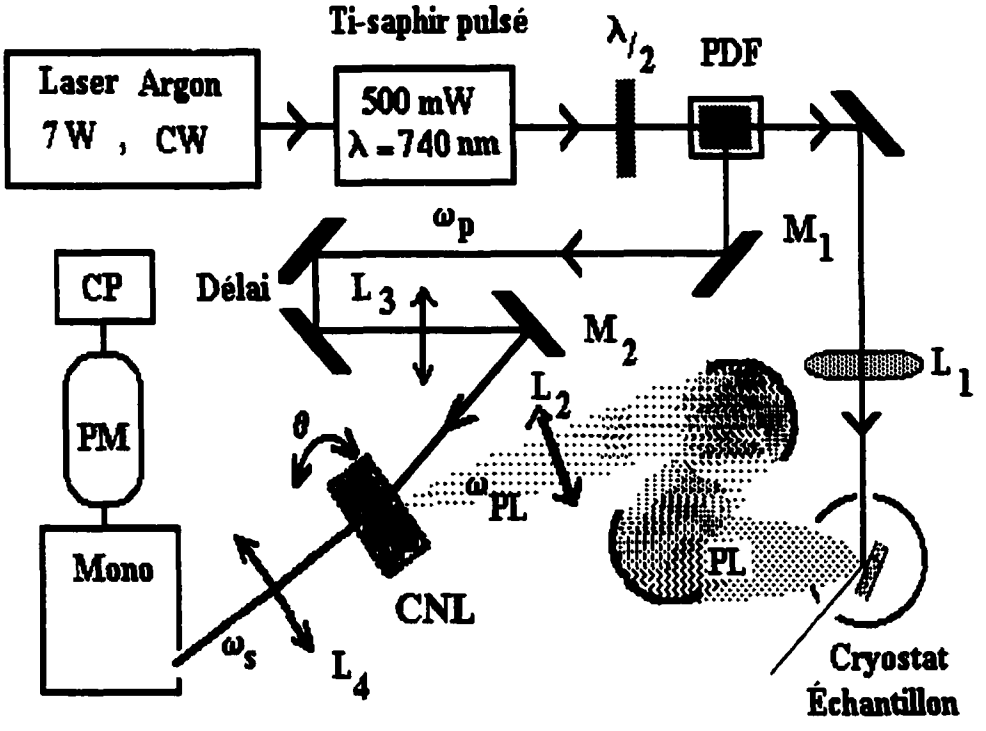


Figure 2.6 : Schéma du montage de PLRT utilisé. PDF : polariseur et diviseur du faisceau; L_i (i = 1 à 4) : lentilles convergentes; CNL : cristal non linéaire; Mono : monochromateur; PM : photomultiplicateur, et CP : compteur de photons.

Avec ce type de montage, nous pouvons obtenir ce que nous convenons d'appeler des spectres ou des cinétiques. Dans le cas des spectres, la ligne à délai est à une position fixe comprise entre zéro et 1000 ps. La luminescence poly-chromatique (IR) émise par

l'échantillon est alors dispersée par le spectromètre et enregistrée par le compteur de photons. λ_P étant fixe, à toute λ_{IR} correspond une λ_S. Sachant que l'angle d'accord de phase varie avec λ_{IR}, le cristal non linéaire doit donc tourner de façon synchrone avec le spectromètre.

Dans le cas des cinétiques, il s'agit de l'observation de l'évolution temporelle de la luminescence issue de l'échantillon, émise à une λ_{IR} donnée (fixe). Le spectromètre et le cristal non linéaire sont alors positionnés (fixes), respectivement, à λ_S et à l'angle d'accord de phase correspondants à λ_{IR}. L'évolution temporelle est obtenue en déplaçant, par incréments discrets, la ligne à délai.

2.5.1 Optimisation du signal à la somme des fréquences

Supposons qu'une surface S_E de l'échantillon soit excitée par des impulsions laser. Tel qu'illustré à la figure 2.7, nous supposons la luminescence émise par l'échantillon (IR) est collectée par un ensemble de deux lentilles de distances focales f_1 et $f_2 = M \times f_1$, respectivement.

Désignons par $N(h\nu_{IR}, t)\, d(h\nu_{IR})\, dt$ le nombre de photons émis par l'échantillon, entre les temps t et t + dt, et ayant des énergies comprises entre $h\nu_{IR}$ et $h\nu_{IR} + d(h\nu_{IR})$. Alors, en présence d'une impulsion laser focalisée sur une surface S_{CNL} du cristal non linéaire, le

nombre de photons générés par ce dernier (à la somme des fréquences), entre les temps t et t + dt, et ayant des énergies comprises entre $h\nu_S$ et $h\nu_S + d(h\nu_S)$ peut s'écrire sous la forme :

$$N(h\nu_S,t)\ \ d(h\nu_S)\ \ dt =$$

$$\frac{1}{4}\left[N(h\nu_{IR},t)\ \ d(h\nu_{IR})\ \ dt\right]\Delta\Omega\ \ \eta_q(\Delta k=0)\cdot\left(\frac{S_{CNL}}{S_E M^2}\right)\left(\frac{\Delta\phi}{\Delta\Omega/M^2}\right) \qquad (2.23)$$

où $\Delta\Omega$ est l'angle solide de réception de la luminescence (IR) par le cristal non linéaire.

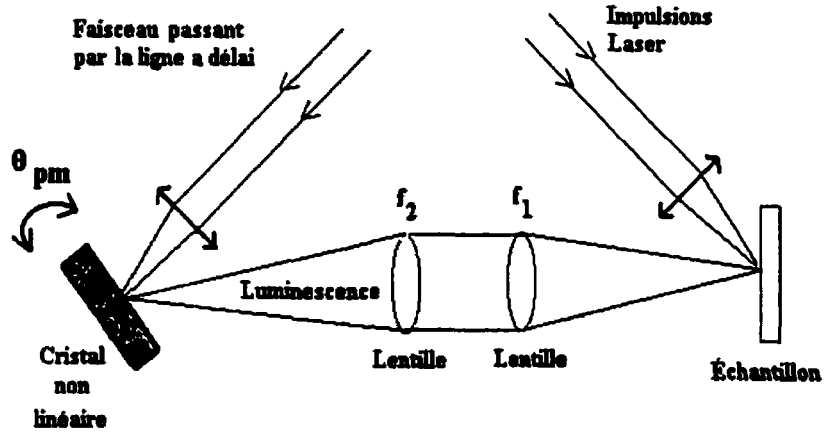


Figure 2.7 : Illustration de la génération du signal à la somme de deux fréquences et de son optimisation.

Le facteur ¼, dans le second membre de l'équation précédente, est le produit de (½) fois (½). En effet, tenant compte des angles et des longueurs d'ondes selon lesquels la

luminescence IR est émise, seulement la moitié de celle-ci, en moyenne, n'est exploitée pour la génération du signal à la somme des fréquences. Cela explique l'origine du premier terme ½. De plus, la luminescence (IR) émise par l'échantillon est non polarisée. Alors, 50 % de celle-ci est correctement polarisée pour remplir la condition d'accord de phase, d'où le deuxième facteur ½.

Dans le second membre de l'équation (2.23), le maximum de l'un ou l'autre des deux termes entre parenthèses est un. Alors, on peut en tirer deux conclusions. L'intensité du signal à la somme des deux fréquences diminue davantage lorsque : (1) l'angle d'acceptation du cristal non linéaire devient de plus en plus petit devant $\Delta\Omega/M^2$; (2) le terme $S_E M^2$ devient de plus en plus grand par rapport à S_{CNL}.

Posons $X_1^2 = \Delta\Omega/\Delta\phi$ et $X_2^2 = S_{CNL}/S_E$. On peut montrer que l'intensité du signal à la somme des deux fréquences atteint sa valeur maximale pour tout M compris entre X_1 et X_2. De plus, la valeur de ce maximum est plus grande lorsque X_1 est supérieur à X_2.

2.5.2 Réglage de l'origine de la ligne à délais

Dans l'étude de phénomènes ultra-rapides, la détermination précise de l'origine des délais est essentielle. Une première méthode consiste à obtenir un signal d'autocorrélation, à travers le cristal non linéaire, entre la lumière diffusée par l'échantillon et les impulsions

laser passant par la ligne à délais. Notons que la configuration non colinéaire permet d'obtenir un signal d'autocorrélation avec un bruit de fond négligeable. Par contre, la configuration colinéaire produit un bruit de fond considérable car chacun des deux faisceaux génère sa seconde harmonique.

Outre sa grande précision dans la détermination de l'origine des délais, cette méthode permet une évaluation précise du temps de réponse du système. En effet, la largeur temporelle du signal d'autocorrélation est toujours plus grande que celle de l'impulsion laser. Dans certains cas, l'origine des délais peut être déterminée avec une assez bonne précision en observant l'évolution temporelle de la PL issue d'une bande ayant un temps de montée extrêmement rapide.

2.6 Certaines sources de bruit

En général, l'intensité du signal obtenu par conversion vers les hautes fréquences est assez faible. Conséquemment, des fluctuations dans l'impulsion laser et/ou le bruit de fond du photomultiplicateur constituent les sources majeures de bruit. Il est alors conseillé de pomper avec un laser le plus stable possible, de refroidir le photomultiplicateur et d'utiliser la technique de comptage de photons afin d'éliminer les petites impulsions de bruit. De plus, pour une luminescence à des longueurs d'ondes proches de celle du laser, l'intensité de la seconde harmonique du laser peut être plus élevée que celle du signal obtenu par conversion vers les hautes fréquences. Une façon

de contourner ce problème consiste à modifier les polarisations respectives des ondes IR et P de façon à ce que la condition d'accord de phase pour la génération de la seconde harmonique (à la raie laser) ne soit plus satisfaite.

2.7 Montage expérimental de photoluminescence en régime continu

Le montage de photoluminescence standard, utilisé pour caractériser les structures à puits quantiques multiples, est présenté à la figure 2.8. Les deux raies, 488 nm et 514 nm, d'un laser argon (Spectra Physics, modèle 164) ont été utilisées comme longueurs d'ondes d'excitation des échantillons. Le faisceau est focalisé, sur les structures, par une lentille de 16 cm de distance focale. Des filtres de densité neutre calibrés (New Focus) ont permis de faire varier la densité d'excitation. La photoluminescence émise par l'échantillon est recueillie par une grande lentille de 13 cm de distance focale, puis focalisée sur la fente d'entrée d'un monochromateur de 0.5 m (Acton Research). La distance qui sépare l'échantillon de la fente d'entrée du monochromateur est de 52 cm, soit quatre fois la distance focale de la lentille placée au centre. Un obturateur tournant à une fréquence de 15 Hz est connecté à une détection synchrone (Stanford Research). Trois circuits, construits avec des photodiodes Si, InGaAs et PbS ont permis une détection de la photoluminescence sur une gamme de longueurs d'ondes allant de 400 nm à 2500 nm. Pour une meilleure optimisation de la détection, la lentille de focalisation à l'entrée du spectromètre ainsi que l'échantillon étaient placés sur des unités permettant leur déplacement dans l'espace (x,y,z). Dans l'étude de la variation de l'intensité de la

photoluminescence en fonction de la densité d'excitation, les largeurs des fentes de l'entrée et de la sortie du monochromateur ont été maintenues constantes.

Les mesures de photoluminescence standard, en fonction de la densité d'excitation, ont été faites à T = 77 K et à T = 300 K. Quant aux mesures de la PL en fonction de la température, une détection basée sur la transformée de Fourier par un spectromètre Bomem (de l'université de Montréal) a été utilisée.

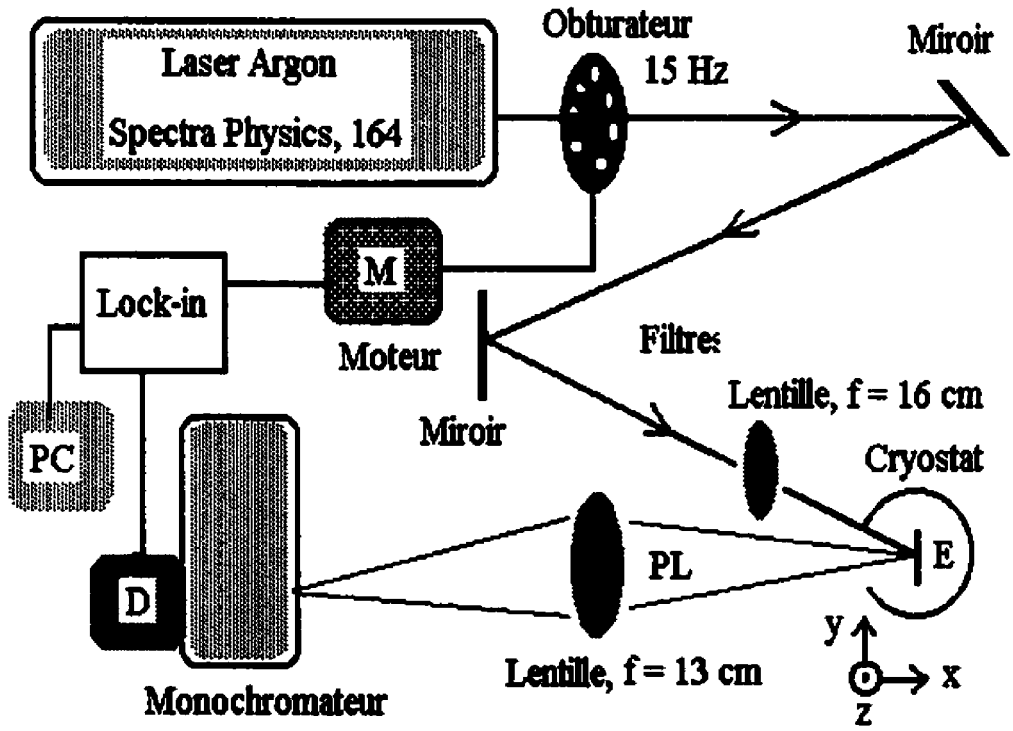


Figure 2.8 : Schéma du montage de photoluminescence standard. PL = Photoluminescence, E : échantillon, D : détecteur et PC : ordinateur.

2.8 Description du montage expérimental de la diffraction de rayons X à haute résolution

La diffraction de rayons X à haute résolution est une technique non destructive très utilisée pour caractériser des hétérostructures semi-conductrices . En effet, par cette technique on peut déterminer la composition, le nombre de périodes et les épaisseurs relatives des multicouches cristallines dans les super-réseaux. L'usage de la diffraction de rayons X pour l'évaluation de structures semi-conductrices a été revu par plusieurs auteurs [100, 101]. Nous nous limitons ici à la description du montage.

Le diffractomètre Philips à haute résolution que nous avons utilisé est formé de deux composantes de base, qui sont : le monochromateur et le goniomètre.

Tel qu'illustré par la figure 2.9, le monochromateur est composé de quatre cristaux de germanium de haute pureté. La première paire de cristaux assure la très bonne collimation du faisceau de rayons X incident, produit par la raie CuKα1 (λ = 1.54051 Å). Cette opération de collimation est nécessaire afin de minimiser la dispersion du faisceau au moment de sa diffraction. Le troisième cristal est placé de façon à minimiser la dispersion spectrale ($\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-5}$). Ainsi, ce cristal permet de réduire l'élargissement du pic de diffraction. Le quatrième cristal réfléchit le faisceau monochromatique obtenu dans sa direction initiale.

Le monochromateur proposé par Bartels [102] offre deux configurations de mesures: une pour une meilleure résolution (faible dispersion spectrale) et une pour une plus grande intensité du faisceau. En effet, dans le premier cas les cristaux doivent être alignés suivant les plans (440). Alors que, dans le second cas, les cristaux sont alignés suivant les plans (220). Avec la configuration (220), la résolution angulaire est de 12 sec et l'intensité du faisceau est de 900 000 coups par seconde. Sachant qu'un gain en intensité est souhaité pour des couches minces, la configuration (220) est généralement utilisée.

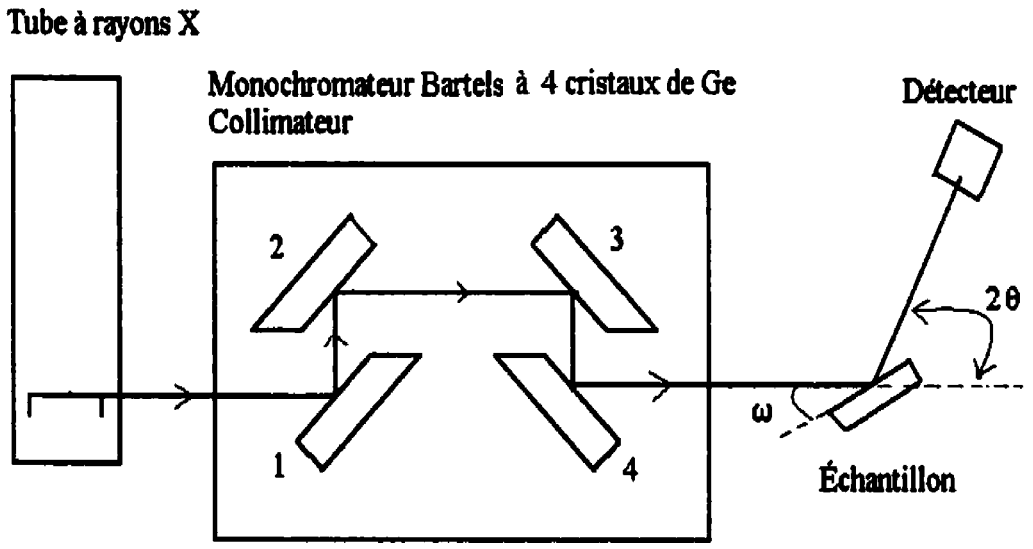


Figure 2.9 : Schéma d'un diffractomètre de rayons X à haute résolution.

Le goniomètre, servant de porte-échantillon, assure une grande précision angulaire. Une représentation spatiale du goniomètre est donnée à la figure 2.10. La rotation angulaire ω

du goniomètre peut se faire à des intervalles de l'ordre de la seconde (0.00025 °), ce qui permet une bonne séparation angulaire des pics satellites dans un spectre de diffraction d'une structure à puits quantique multiples.

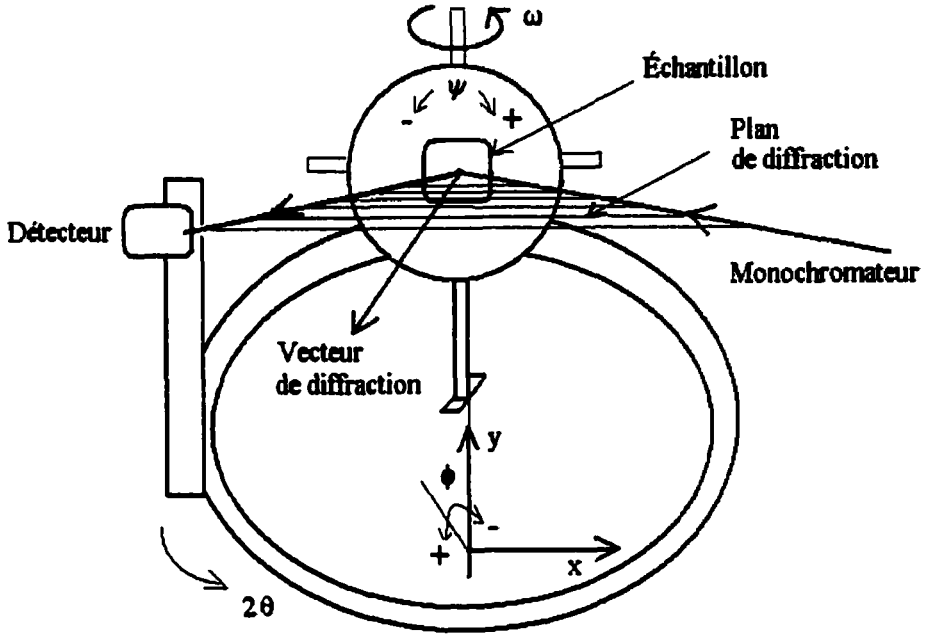


Figure 2.10 : Configuration spatiale du goniomètre.

La rotation azimutale Ψ, pouvant couvrir une plage angulaire de ± 178° permet de déterminer les désorientations du substrat ou des couches épitaxiales. L'inclinaison du plan d'incidence par rapport au plan horizontal est ajustée par l'angle ϕ pouvant varier de ± 5° par rapport à la verticale. L'angle ϕ permet de ramener le vecteur de diffraction dans

le plan de diffraction, assurant ainsi une meilleure optimisation du signal diffracté (voir figure 2.10). Les plus petites variations de ϕ et Ψ sont de 0.001° et 0.1°, respectivement.

Les profiles de diffraction obtenus proviennent de balayages en (ω, 2θ). En d'autres termes, l'échantillon (repéré par ω) et le détecteur (repéré par 2θ) tournaient en même temps. 2θ est l'angle entre le prolongement du faisceau incident et le faisceau diffracté et collecté par le détecteur.

CHAPITRE 3

Interprétation des résultats obtenus par photoluminescence standard

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons et interprétons les résultats obtenus par des mesures de photoluminescence en régime continu (PL-cw) et d'absorption. Dans un premier temps, nous étudions les variations de l'intensité de photoluminescence, de la température effective des porteurs et des positions des pics ainsi que leur largeur à mi-hauteur avec la densité d'excitation. Dans un deuxième temps, nous observons les évolutions des mêmes paramètres que précédemment, mais en faisant varier la température du réseau Dans les deux types d'investigations, l'influence des qualités structurales (comme l'homogénéité des compositions des couches et la régularité de leur épaisseur) et des processus de relaxation des porteurs sur les propriétés optiques et sur les performances d'une hétérostructure laser seront discutés.

3.2 Résultats et interprétation des mesures de PL-cw

Des spectres de photoluminescence en continu à 77 K des structures A, B et C, obtenus pour différentes densités d'excitation, sont représentés aux figures 3.1, 3.2 et 3.3 respectivement. Les résultas obtenus pour une température de réseau de 300 K sont représentés par les figures 3.4, 3.5 et 3.6. Dans les deux cas, la longueur d'onde d'excitation est de 488 nm. Les pics principaux de photoluminescence correspondent aux transitions C1-HH1 entre les états fondamentaux dans les puits PQ (PQ-EF). Quant aux épaulements, du côté des hautes énergies, ils correspondent aux transitions C1-LH1, C2-HH2 (non visibles pour B et C) et aux recombinaisons dans les barrières [103]. La référence [103] constitue l'annexe A de cette thèse.

Le profil de ces spectres est consistent avec un processus de recombinaison électrons-trous du type bandes à bandes. Toutefois, on note la présence de queues de luminescence aux basses énergies. Pour la structure A, le centre de l'épaulement est à ~ 25 meV sous le pic principal. Quant aux structures B et C, il se situe à ~ 30 meV sous les pics correspondant aux transitions fondamentales dans les PQ. Sachant que l'énergie de liaison de l'exciton augmente avec la réduction de la largeur du PQ [104] (ce qui est le cas pour B et C), on pourrait penser à une transition excitonique. Cependant, l'énergie de liaison de l'exciton évaluée expérimentalement [104] et théoriquement [105] n'est pas aussi grande. Nous en donnerons des exemples dans la section suivante.

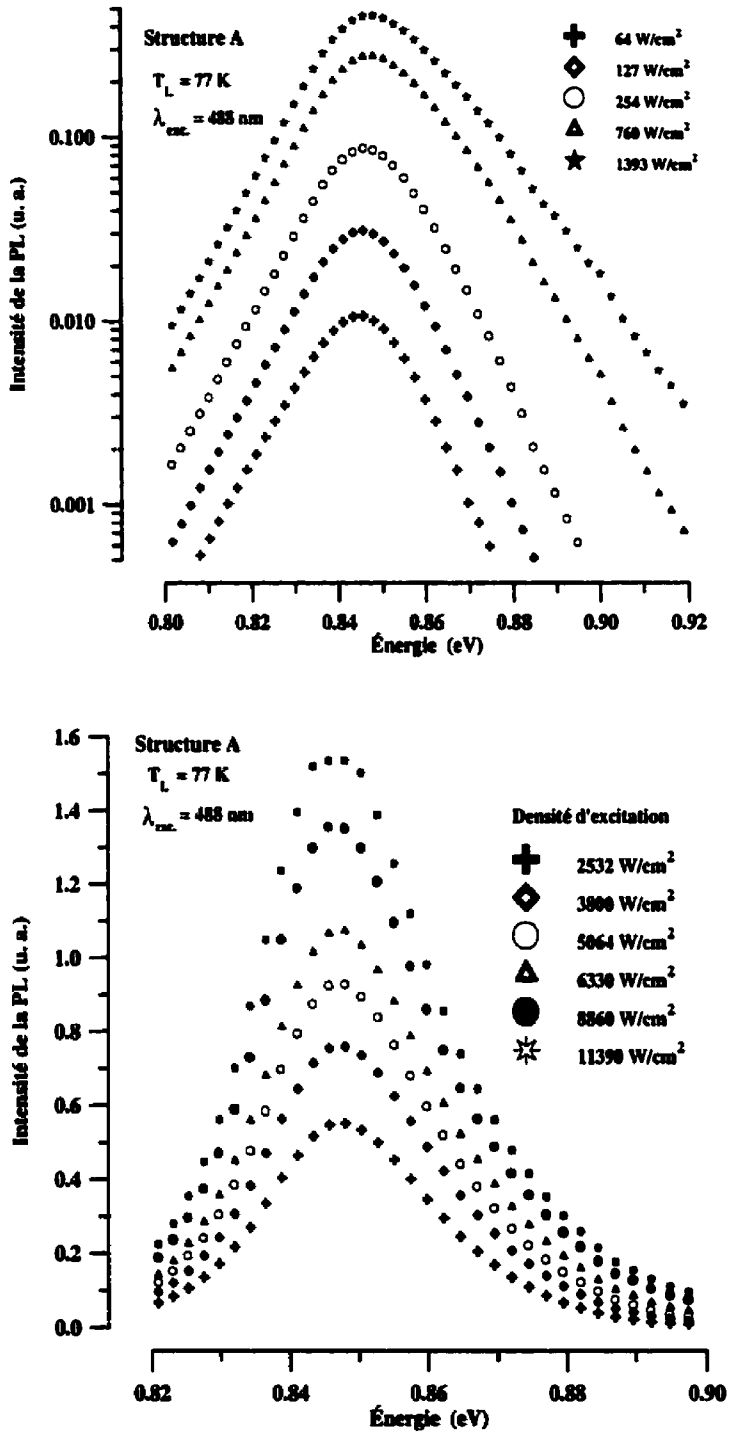


Figure 3.1 : Spectres de photoluminescence de la structure A à $T_L = 77$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

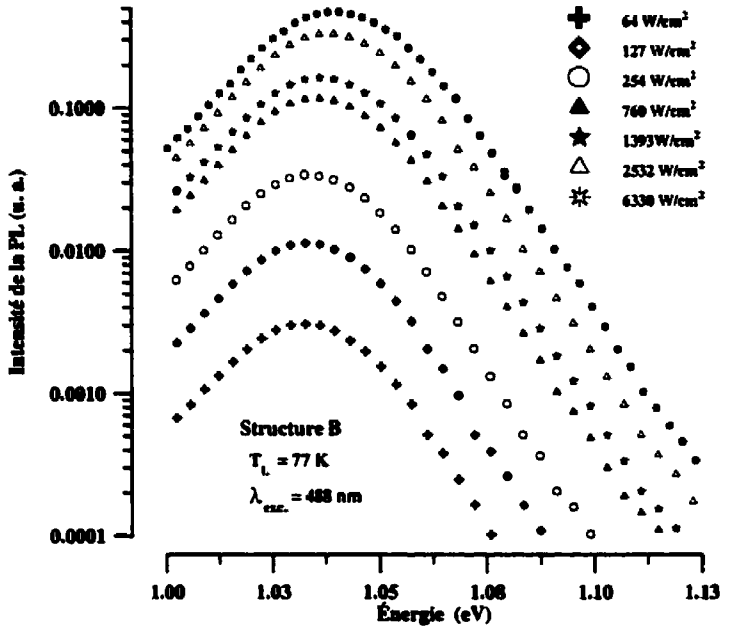


Figure 3.2 : Spectres de photoluminescence de la structure B à $T_L = 77$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

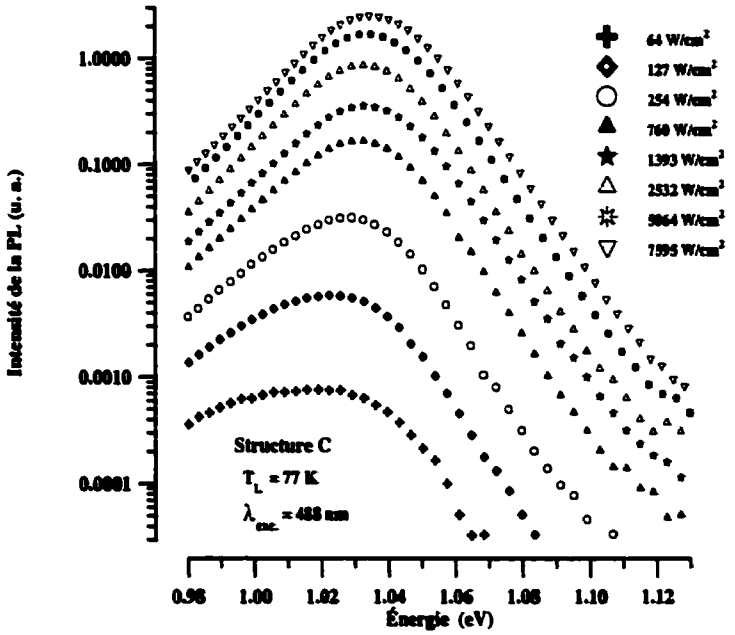


Figure 3.3 : Spectres de photoluminescence de la structure C à $T_L = 77$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

L'énergie de liaison de l'exciton est de l'ordre de 10 meV pour une structure d'InGaAs/InP dont la largeur du PQ est de 65 Å et elle décroît vers des valeurs similaires à celles obtenues dans les massifs en augmentant considérablement l'épaisseur du PQ [104, 105]. Nous attribuons donc cet épaulement à un déplacement du bord de la bande causé par la contrainte compressive, par des champs électriques internes, par des fluctuations des largeurs des puits quantiques ou par une inhomogénéité des compositions [106]. Dans une telle éventualité, la densité d'états qui lui est associée est en général faible et sa photoluminescence doit se saturer rapidement avec l'augmentation de la densité d'excitation.[107]. L'observation attentive des spectres, spécialement ceux à 77 K, appuie cette hypothèse.

Aux fortes densités d'excitation, nous avons observé pour la structure A à T_L = 77 K un signal de photoluminescence centré respectivement sur ~1.12 eV (figure 3.7a). Ce signal vient de la région de confinement (RC, adjacente à la couche couvercle d'InP) dont la longueur d'onde d'émission est de 1.15 μm à la température ambiante (un schéma de la structure A est donné à la figure 2.1). Cette PL provient de la région de confinement, adjacente à la couche couvercle d'InP et Cette couche est bien plus épaisse (1000 Å) que l'épaisseur de l'ensemble des régions de confinement, PQ et barrières. Par conséquent, à T_L = 77 K, la densité d'états y est nettement plus élevée. En ce qui concerne la structure B, aux fortes densités et T_L = 300 K, nous avons observé un signal de PL centré sur ~ 1.32 eV (figure 7.7b). Nous attribuons cette luminescence au zinc utilisé comme dopant de type P de la couche couvercle d'InP. Nous ne l'avons pas observé dans A car cette

couche n'y est pas dopée. D'ailleurs, nous verrons l'effet de la diffusion du sur les franges du spectre de diffraction de RX de haute résolution (chapitre 5).

Pour des densités d'excitation aussi élevées que 15 kW/cm^2, nous n'avons pas observé d'émission stimulée. En supposant que chaque photon incident crée une paire électron-trou et que tous les porteurs diffusent vers les PQ avant de se recombiner, il est possible d'estimer la densité de porteurs photoexcités par unité de surface (n_{2D}). Dans le tableau 3.1, nous en donnons quelques valeurs déterminées pour diverses densités d'excitation (D. E.) et pour des temps de vie de porteurs (τ) de 1000 ps et de 1500 ps. L'énergie d'excitation $\hbar\omega$ est de 2.54 eV (la raie 488 nm). Les temps de vie des porteurs sont conformes à nos résultas obtenus par photoluminescence résolue en temps et que nous présenterons dans le chapitre suivant.

Pour la plupart des densités d'excitation utilisées et pour une durée de vie des porteurs de 1 ns, nous remarquons que les concentrations de porteurs (n_{2D}) que les PQ peuvent idéalement collecter sont bien plus élevées que 10^{12} cm^{-3} jugée nécessaire à une inversion de la population dans un laser [108]. Il est donc clair que des processus de recombinaisons non radiatives jouent un rôle non négligeable. Dans de telles hétérostructures, à base de quaternaires, les processus non radiatifs les plus importants sont: la recombinaison Auger, les imperfections d'interface et l'échappement des porteurs vers les barrières. Nous discuterons de ces phénomènes, ainsi que de leurs effets sur la relaxation des porteurs dans les sections subséquentes et au chapitre 4.

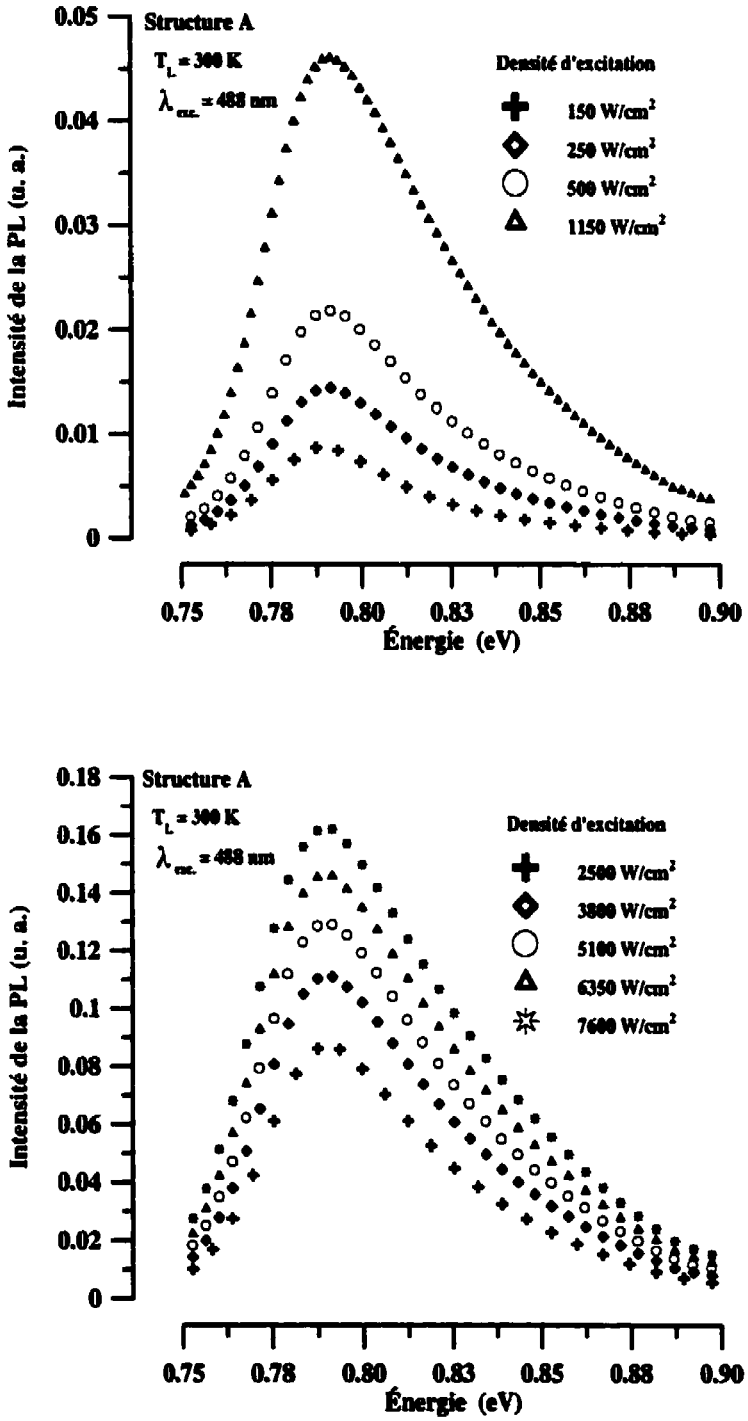


Figure 3.4: Spectres de photoluminescence de la structure A à $T_L = 300$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

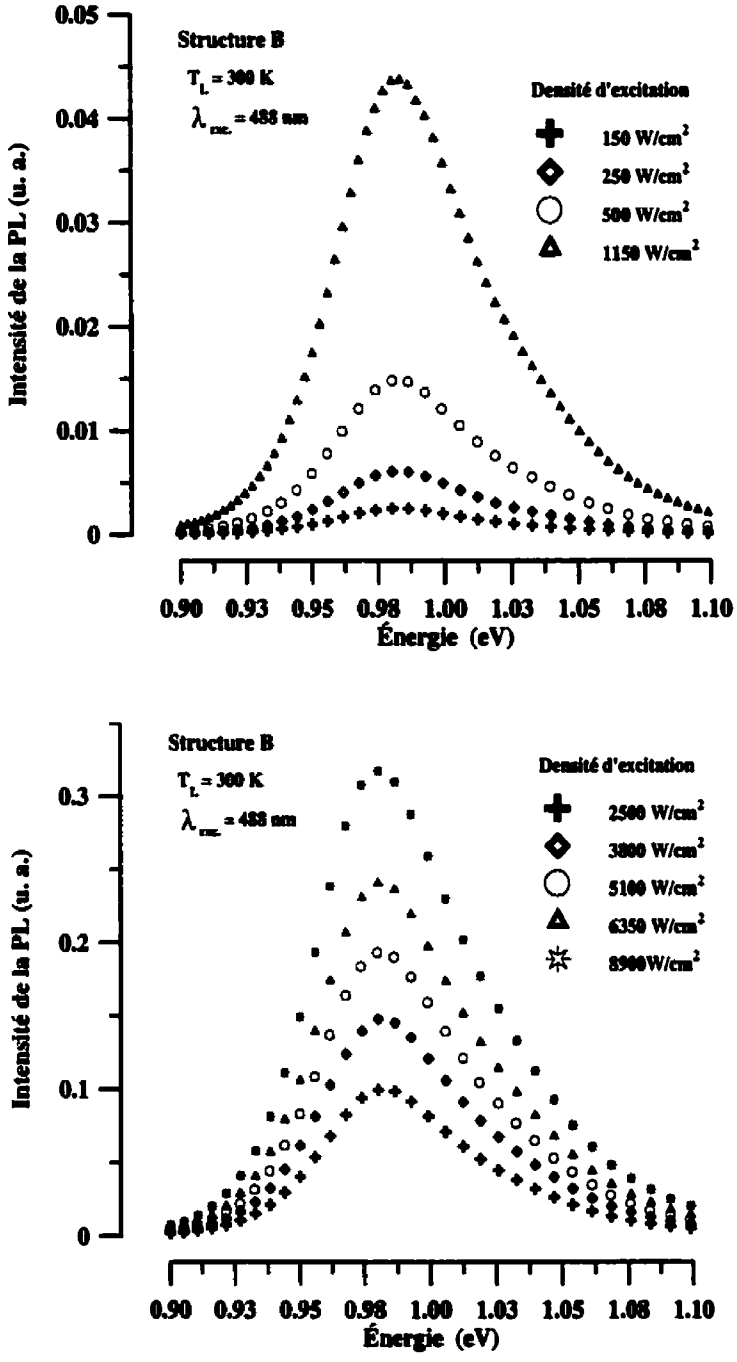


Figure 3.5: Spectres de photoluminescence de la structure B à $T_L = 300$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

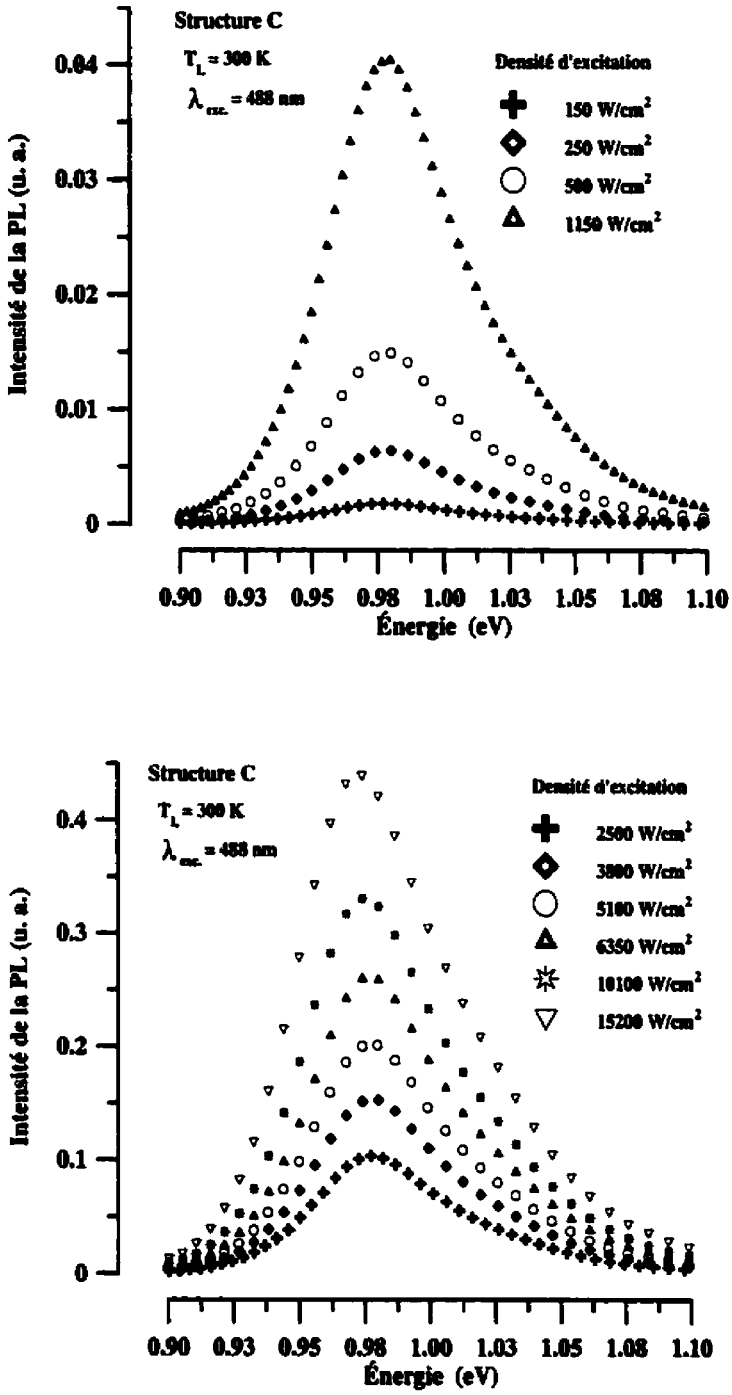


Figure 3.6 : Spectres de photoluminescence de la structure C à $T_L = 300$ K pour diverses densités d'excitation (voir légende).

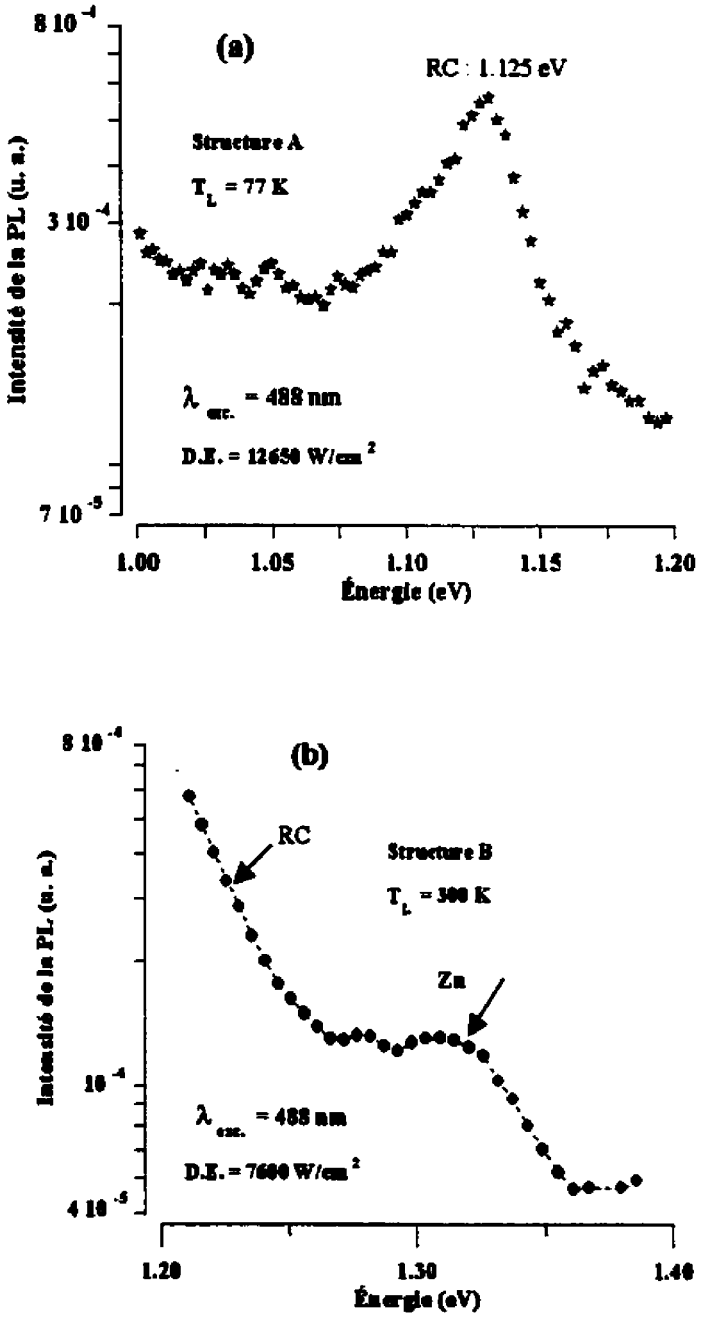


Figure 3.7 : Photoluminescence issue (a) de la région de confinement de A, (b) de la région de confinement et du zinc dans B.

Tableau 3.1 : Densité de porteurs n_{2D} pour diverses densité d'excitation.

	$n_{2D} = \frac{1.23947 \times (D.E.) \times \tau}{1.99 \times 10^{-19} \times \hbar\omega}$ en cm^{-2} τ est exprimé en seconde et $\hbar\omega$ est en eV.	
D. E. (W/cm^2)	n_{2D} pour τ = 1000 ps	n_{2D} pour τ = 1500 ps
250	6.13×10^{14}	9.2×10^{14}
2500	6.13×10^{15}	9.2×10^{15}
8900	2.18×10^{16}	3.29×10^{16}
10100	2.48×10^{16}	3.72×10^{16}
15200	3.73×10^{16}	5.6×10^{16}
20000	4.90×10^{16}	7.36×10^{16}

3.2.1. Interprétation de l'évolution de la PL en fonction de la densité d'excitation

Contrairement aux résultas obtenus pour T_L = 300K, nous remarquons que les positions des pics centraux des PL se déplacent vers les hautes énergies avec l'augmentation de la densité d'excitation à T_L = 77 K (figures 3.1, 3.2 et 3.3). Les températures effectives des porteurs (T_C) sont inférées à partir des queues aux hautes énergies des intensités de la PL. En effet, la PL issue des PQ dans ce régime peut être décrite par:

$$I(E) \propto \exp\left(-E / k_B T_C\right) \qquad (3.1)$$

où E est l'énergie des photons émis et k_B est la constante de Boltzmann. Le détecteur utilisé est à base d'InGaAs. Il possède une réponse spectrale assez constante dans la gamme d'énergies qui nous intéresse. Comparée aux approximations utilisées pour établir l'équation (3.1), l'incertitude que le détecteur introduit sur l'estimation de T_C est négligeable. Les variations de T_C ainsi que les déplacements des pics centraux avec la densité d'excitation, sont représentés aux figures 3.8, 3.9 et 3.10 pour les structures A, B et C respectivement.

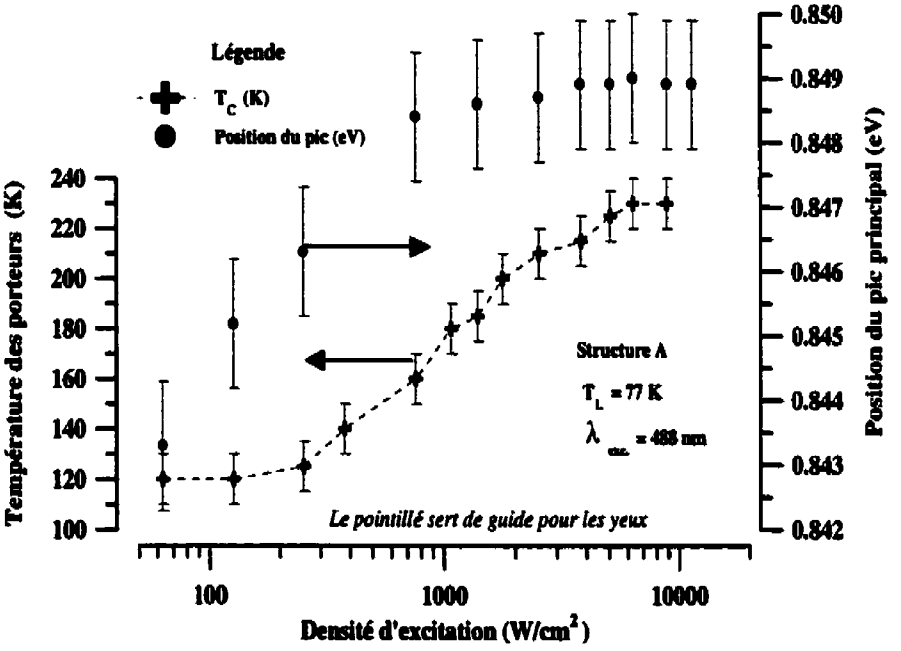


Figure 3.8 : Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de A avec la densité d'excitation

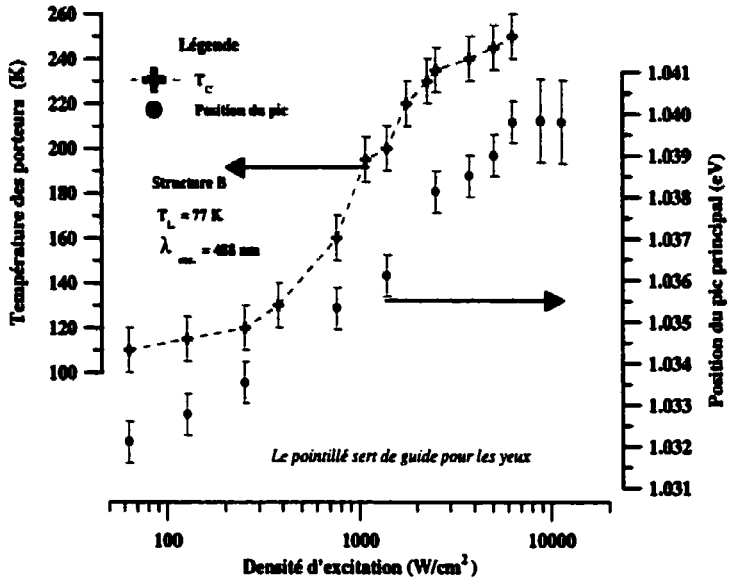


Figure 3.9 : Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de B avec la densité d'excitation.

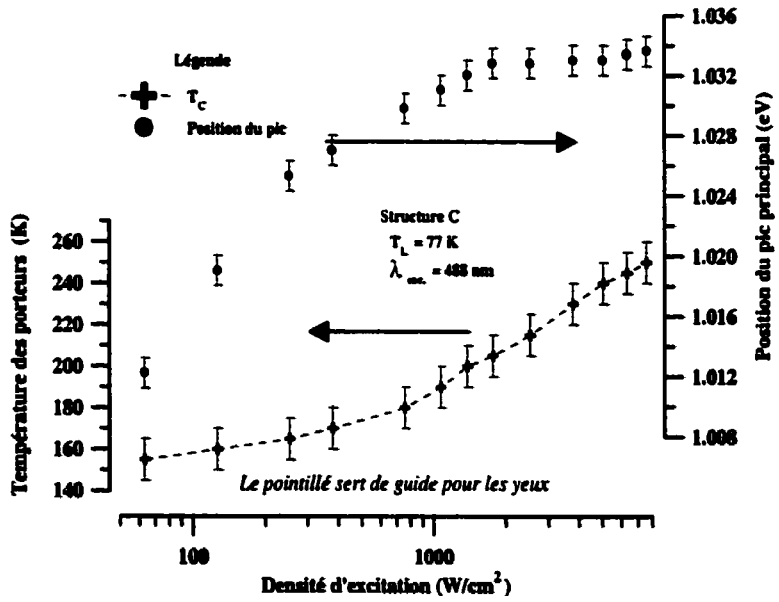


Figure 3.10 : Évolution de T_C et de la position du pic central de la PL de C avec la densité d'excitation.

D'après ces figures, nous remarquons que la température effective des porteurs (T_C) est supérieure à celle du réseau dans les trois structures. La variation de la température avec la densité d'excitation nous renseigne sur les mécanismes par lesquels les porteurs acquièrent ou perdent de l'énergie. En relaxant, une population de porteurs perd de l'énergie (vers le réseau ou d'autres porteurs), mais en gagne également. Ce gain provient de la relaxation d'un autre groupe de porteurs excités et ayant initialement, une énergie plus élevée. Il a été démontré que la température d'une population de porteurs (en équilibre thermique) est déterminée en égalisant les taux de perte et d'acquisition d'énergie [74, 109-113]. La température effective des porteurs est obtenue en simulant les queux de hautes énergies des spectres de PL par $I_{PL}(E) \alpha \exp(-E/k_B T_C)$, où $I_{PL}(E)$ est l'intensité de la PL à une énergie E et k_B est la constante de Boltzmann. Comme le montrent les figures 3.8, 3.9 et 3.10, T_C augmente rapidement avec la densité d'excitation à des régimes de faibles densités d'excitation. Par contre, T_C augmente plus lentement aux régimes de fortes densités d'excitation. Un comportement similaire a été observé par Shah et collaborateurs [109, 112, 113]. Il a été interprété par le fait qu'à haute densité d'excitation, la concentration de porteurs s'approche d'une valeur critique pour laquelle les taux de relaxation par interactions électron-électron et par électron-phonon LO sont égaux [109, 111-113]. Dans de telles circonstances, la quantité d'énergie transférée par chaque porteur photo-excité au système de porteurs augmente moins rapidement avec la densité d'excitation conduisant à une augmentation lente de T_C. D'un autre côté, la population de phonons peut s'amplifier en présence d'une grande concentration de porteurs photo-excités. Il en résulte que ces mêmes porteurs peuvent réabsorber des

phonons. Ce phénomène est connu sous le nom de porteurs chauds et phonons chauds. De plus, les processus Auger augmentent avec l'augmentation de la concentration de porteurs photo-excités et agissent comme une source de réchauffement des porteurs [37-40]. Ces processus ralentissent la relaxation des porteurs et diminue l'efficacité de leur capture par les puits quantiques. Il en résulte que les performances optiques d'un laser sont fortement affectées (grande largeur à mi-hauteur et une faible fréquence de modulation, etc). Pour une discussion plus détaillée des mécanismes de relaxation, basée sur les évolutions de la PL et de T_C avec la densité d'excitation, le lecteur est prié de se référer à nos résultats publiés dans la référence [103] (annexe A), ainsi qu'à la bibliographie qui s'y trouve.

Nous remarquons que les positions des pics principaux se déplacent vers les hautes énergies à mesure que la densité d'excitation augmente. Lorsque la saturation des PQ est atteinte (ou dépassée), les positions des pics de PL demeurent sensiblement inchangées. À la saturation, il y a un équilibre dynamique entre plusieurs processus physiques, et la PL issue des PQ ne change que très peu. Nous discuterons cette notion, avec plus de détails, au chapitre 4. Ces déplacements sont de l'ordre de 5 meV, 8 meV et 25 meV pour les structures A, B et C, respectivement. Ces déplacements peuvent être attribués, *en partie*, à des fluctuations des épaisseurs des PQ [114]. D'autres phénomènes, tels que le remplissage de bande, peuvent contribuer aux déplacements des pics de PL. Examinons-les successivement.

Supposons que le phénomène de remplissage de bande soit la cause principale des déplacements vers le "bleu" des pics de PL. Dans un tel cas, nous devons nous attendre à ce que le déplacement du pic de la PL de la structure B soit plus grand que ceux des deux autres structures. En effet, l'épaisseur de sa région active est plus petite que ses homologues dans A et C et le remplissage de bande, le cas échéant, y doit être plus prononcé. Quant à la structure C, son pic de PL s'est déplacé de 25 meV. Il s'agit d'un grand déplacement qu'on ne peut attribuer, uniquement, au phénomène de remplissage bandes. Parmi les trois structures, C est la plus épaisse. Par conséquent, on pourrait penser à des défauts structuraux ou relaxation de la contrainte induisant des modifications du gap qui se manifestent essentiellement à basse température du réseau. Or, la caractérisation structurale par diffraction de RX de haute résolution (chapitre 5). nous apprend qu il n'en est pas ainsi. Dans ce qui suit nous discuterons les effets des fluctuations des épaisseurs.

Des fluctuations d'épaisseurs dans des PQ causent une modulation, dans l'espace réel, de la bande interdite telle qu'illustrée à la figure 3.11. Comme le temps de diffusion est de l'ordre de la piscoseconde (chapitre 4), il est beaucoup plus court que celui des recombinaisons radiatives (~ ns). Par conséquent, les porteurs photogénérés peuvent diffuser vers les creux de la modulation avant de se recombiner. À basse densité d'excitation, les porteurs occupent des états de faibles énergies. Par conséquent, la largeur à mi-hauteur (FWHM) du spectre de la PL est faible et l'énergie du pic correspond au minimum de la bande interdite(E^{min}) (figure 3.11-b). En augmentant

graduellement la densité d'excitation, de plus en plus de porteurs vont occuper des états de hautes énergies. La position du pic de la PL se déplace alors vers des énergies de plus en plus élevées et peut atteindre la valeur E^{max}. De façon concomitante aux déplacements des pics principaux vers les hautes énergies, les FWHM augmentent à leur tour (figure 3.11-a). Ayant émis cette hypothèse, nous passons à l'étude des sources d'élargissement d'un spectre de luminescence tout en essayant de préciser les paramètres dont elles dépendent.

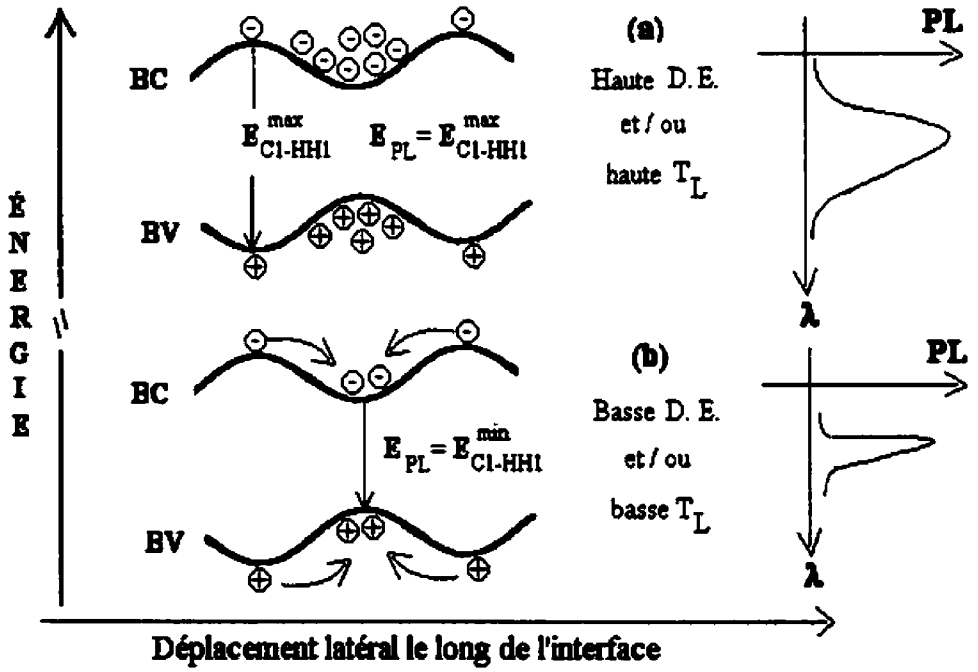


Figure 3.11 : Illustration schématique de modulation de la bande interdite et des possibilités de relaxation des porteurs.

Outre le phénomène de remplissage de bandes, on peut citer les processus suivants comme sources d'élargissement d'un spectre de PL: (i) des fluctuations des épaisseurs

des PQ, (ii) des variations des hauteurs de potentiel dues à des inhomogénéités des compositions dans les PQ et les barrières, et (iii) des défauts structuraux aux interfaces. À la figure 3.12, nous montrons la variation des largeurs à mi-hauteur des pics principaux de PL en fonction de la température du réseau et de la densité d'excitation.

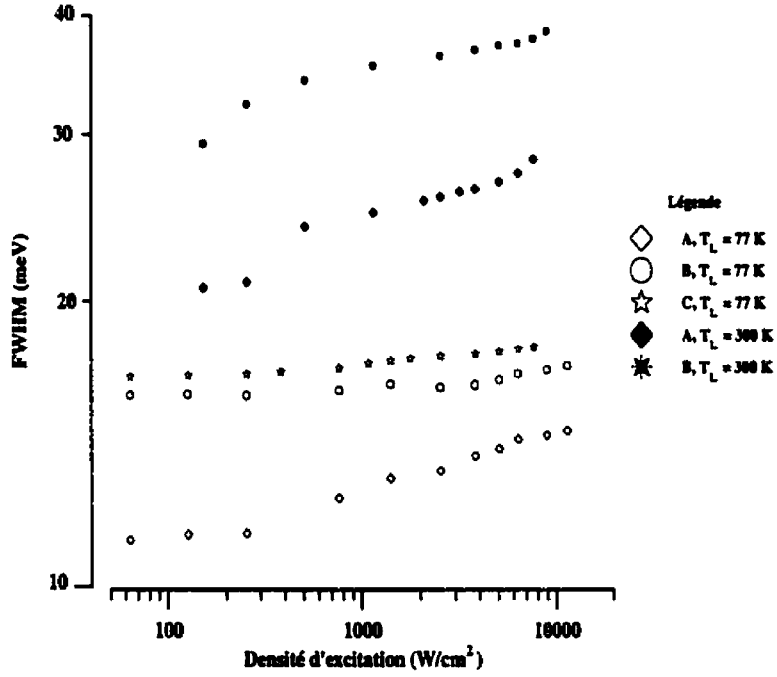


Figure 3.12: Évolution des largeurs à mi-hauteur de la PL de A, B et C en fonction de la densité d'excitation pour deux températures de réseau T_L = 77 K et T_L = 300 K.

Si nous désignions par Γ la largeur à mi-hauteur d'un spectre de PL, celle-ci pourrait s'écrire sous la forme :

$$\Gamma^2 = \Gamma_{hom}^2 + \Gamma_{inho}^2 \qquad (3.2)$$

La partie inhomogène de Γ (Γ_{inho}) prend la forme d'une somme de deux termes :

$$\Gamma_{inho}^2 = \Gamma_1^2 + \Gamma_2^2 \qquad (3.3)$$

où Γ_1 est la largeur à mi-hauteur à zéro K résultant des variations des compositions des PQ et Γ_2 est due à des imperfections d'interface dans les hétérostructures. Les fluctuations aux interfaces sont dues aux occupations aléatoires des sites du groupe III par les atomes In et Ga et des sites du groupe V par les atomes As et P. Ainsi, même si une couche avait une composition moyenne uniforme, son spectre de PL aurait inévitablement une composante d'élargissement qui est due à la disposition aléatoire des atomes aux interfaces. La partie homogène de Γ (Γ_{hom}) dépend de la température; nous la considèrerons dans la section suivante. Par ailleurs, l'existence d'une certaine population d'électrons dans les PQ cause un élargissement de la PL [115]. La contribution de ce mécanisme à l'élargissement de la PL augmente avec la température du réseau.

À ce niveau, nous revenons à la composante de Γ qui dépend de la température, Γ_{hom}. Cette composante peut s'écrire sous la forme :

$$\Gamma_{hom}^2 = \Gamma_{LO}^2 + \Gamma_{TVF}^2 \qquad (3.4)$$

où Γ_{LO} est l'élargissement dû aux phonons optiques LO et Γ_{TVF} est la composante attribuée à la notion d'une durée de vie finie des porteurs [116]. L'évolution de la largeur à mi-hauteur des spectres de la PL de la structure A en fonction de la température est représentée à la figure 3.13. Nous constatons qu'aux faibles et moyennes températures, l'élargissement des spectres de PL est essentiellement causé par la durée de vie finie des porteurs.

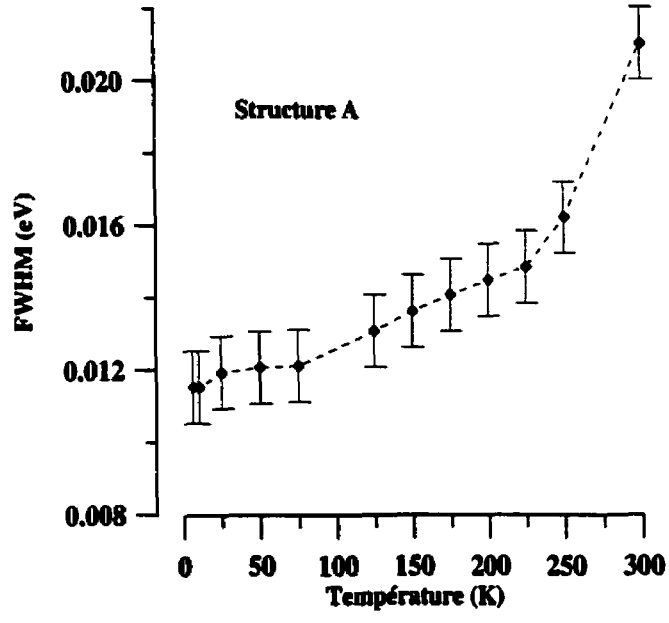


Figure 3.13 : Variation du FWHM des spectres de PL de la structure A en fonction de la température du réseau. La densité d'excitation est ~ 5 W/cm^2.

À un degré moindre, des variations dans la composition des alliages ou des imperfections d'interfaces peuvent agir comme des sources d'élargissement des spectres en modifiant les hauteurs des barrières de potentiels. Cependant, lorsque l'on augmente la température

du réseau de 50 K à 300 K, le FWHM accuse une augmentation de ~ 8 meV. Dans cet intervalle de températures, les interactions entre porteurs et phonons optiques longitudinaux (LO) constituent le processus dominant de relaxation des porteurs. La contribution de 8 meV des phonons LO à l'élargissement des spectres est consistante avec les 8.9 meV déterminés expérimentalement [117] pour de l'InGaAsP émettant à 1.33 μm.

Après avoir revu quelques éléments sources d'élargissement d'un spectre de PL, on peut avoir l'impression que la structure C (ou B) est d'une moins bonne qualité (imperfections d'interface et/ou des variations de la composition). En effet, nous remarquons qu'à T_L = 77 K, les largeurs à mi-hauteur associées aux structures B et C sont plus élevées que celle associée à la structure A. Jusqu'à une certaine mesure, la caractérisation des structures par diffraction de RX changera cette impression en ce qui a trait à la variation des compositions, mais ne nous informera pas plus sur les fluctuations des épaisseurs dans B et C. Pourquoi? Il a été démontré que pour les puits quantiques assez étroits (de largeur $L_z < 50$ Å), toute variation de leur épaisseur, aussi petite soit-elle, cause un élargissement important des spectres de PL [118]. Les PQ de la structure A sont plus épais que ceux de B et C; il en résulte que le FWHM des spectres de A est moins "sensible" aux fluctuations des épaisseurs des PQ que ceux de B et C. Par ces propos, nous voulons tout simplement dire qu'il n'y a pas de croissance épitaxiale parfaite et alors, les fluctuations d'épaisseur et les imperfections d'interface continuent de contribuer au FWHM observé dans les spectres de PL. Dans le but d'identifier la (ou les) cause(s) des déplacements des

pics de PL avec l'augmentation de la densité d'excitation, nous avons discuté certains phénomènes physiques concernés. Une autre hypothèse est à venir.

Dans cette section, nous allons étudier les mécanismes de recombinaison dans nos structures. L'une des méthodes les plus couramment utilisées pour ce genre d'étude est basée sur la variation de l'intensité de la PL (I_{PL}) en fonction de l'intensité de la densité d'excitation (I_{DE}). Selon les résultats de Dotor et collaborateurs [119], I_{PL} est proportionnelle à I_{DE}^2 pour des recombinaisons du type bandes-à-bandes et varie linéairement avec I_{DE} pour des recombinaisons entre excitons. Cependant, avec une analyse plus poussée, on arrive à obtenir des conclusions fort différentes. En effet, puisque les PQ de nos structures sont non dopés, on peut supposer que les densités d'électrons et de trous photogénérés (n et p) sont très grandes comparativement à leurs valeurs à l'équilibre thermique (n_0, p_0) et qu'elles sont égales (n = p). De plus, en ne considérant que trois processus de recombinaison (voir plus bas), le total des taux de recombinaisons radiatives et non radiatives est donné par [120, 121]:

$$R_{tot} = A \times n + B \times n^2 + C \times n^3 \qquad (3.4)$$

où $A \times n$ est le taux de recombinaisons aux niveaux des interfaces, $B \times n^2$ est le taux de recombinaison par émission spontanée et $C \times n^3$ est le taux de recombinaison par processus Auger. Par ailleurs, on sait que le taux de génération des porteurs est proportionnel à I_{DE} et qu'à l'état stationnaire il est égal à R_{tot}. Finalement, sachant que

l'intensité de photoluminescence (I_{PL}) est proportionnelle à n^2 [122], on peut établir moyennant quelques approximations [123], une relation entre I_{PL} et la densité d'excitation du type:

$$I_{PL} \approx I_{DE}^{\alpha} \qquad (3.5)$$

Dans cette expression, l'exposant α peut varier entre 0.6 et 2 et n'est plus restreint aux valeurs exclusives un ou deux. En effet, on peut s'en rendre compte en examinant les cas limites où un processus de recombinaisons domine les autres. Les valeurs de α obtenues selon l'importance de chacun des processus envisagés précédemment sont regroupées dans le tableau 3.2.

Tableau 3.2 : Valeurs de l'exposant α selon le processus dominant de recombinaison.

Processus dominant	Valeur de α
Recombinaison Auger	0.6
Émission spontanée	1
Piégeage de porteurs aux interfaces	2

Aux figures 3.14 et 3.15, nous présentons les évolutions des PL intégrées en énergies, en fonction de la densité d'excitation des structures A, B et C à des températures de réseau de 77 K et 300 K, respectivement. Nous remarquons que I_{PL} évolue linéairement avec I_{DE}, sur au moins deux ordres de grandeurs. Cela indique que la recombinaison radiative

est dominante pour cette gamme de densités d'excitation. Toutefois, pour des densités d'excitation plus fortes, on remarque que I_{PL} augmente beaucoup moins rapidement et semble tendre vers une valeur de saturation. D'ailleurs, l'évolution de I_{PL} en fonction de DE a été lissée par deux segments droites en considérant séparément les régimes de faibles et de fortes densités d'excitation. Ainsi, nous avons obtenu deux pentes correspondant aux deux régimes de DE sus-mentionnés. La pente globale est obtenue en lissant l'évolution de I_{PL} en fonction de DE par un seul segment de droite pour l'ensemble des deux régimes de DE. Les pentes des courbes log (I_{PL}) en fonction de log (I_{DE}), pour les trois structures sont présentées dans le tableau 3.3.

Nous notons que les valeurs des pentes diminuent avec l'augmentation de la densité d'excitation. Ce comportement est le résultat de deux processus physiques. D'abord, les recombinaisons non radiatives attribuées aux centres de piégeages de porteurs sont non négligeables aux faibles densités d'excitation. Par conséquent, les coefficients α sont supérieurs ou proches de un. Ensuite, les centres de recombinaisons se saturent avec l'augmentant de la densité d'excitation et leurs effets diminuent. Par contre, les recombinaisons du type Auger deviennent non négligeables. En effet, les pentes obtenues pour les segments correspondants aux hautes densités d'excitation sont plus petites que l'unité. Ce résultat n'est pas surprenant car pour des lasers à grandes longueurs d'ondes (à base d'InGaAs ou InGaAsP, par exemple), le processus Auger constitue généralement un mécanisme non négligeable de recombinaisons non radiatives [46].

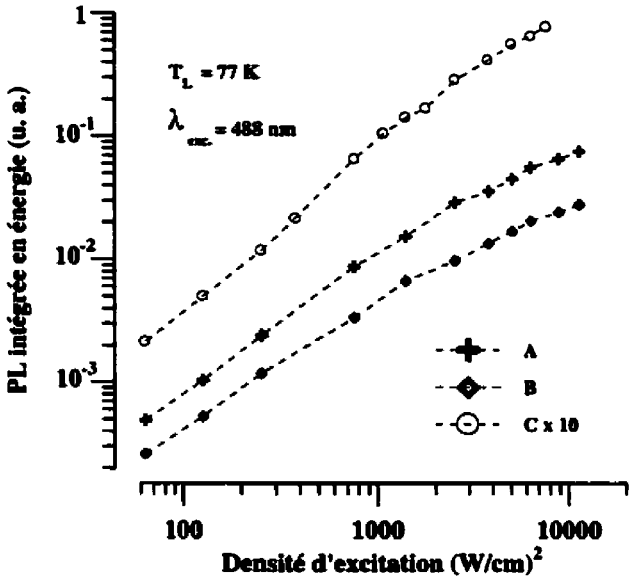


Figure 3.14 : Évolutions des PL intégrées en énergies, en fonction de la densité d'excitation des structures A, B et C à $T_L = 77$ K.

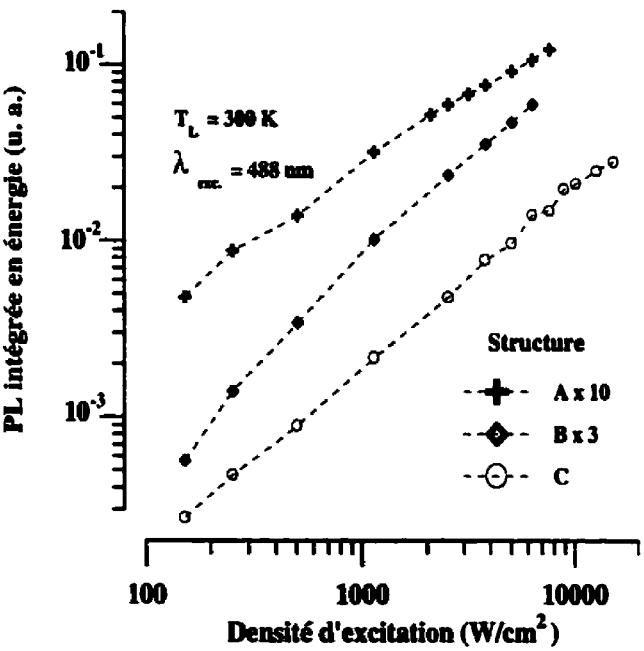


Figure 3.15 : Évolutions des PL intégrées en énergies, en fonction de la densité d'excitation des structures A, B et C à $T_L = 300$ K.

Tableau 3.3: Pentes des tracées *Log* (I_{PL}) en fonction de *Log* (I_{DE})

	$T_L = 77$ K			$T_L = 300$ K		
Structure	Pente aux Faibles D.E.	Pente aux Fortes D.E.	Pente Globale	Pente aux Faibles D.E.	Pente aux Fortes D.E.	Pente globale
A	1.12	0.66	0.99	0.89	0.65	0.82
B	1	0.7	1	1.27	0.98	1.19
C	1.19	1.04	1.16	1.03	0.95	1.02

3.2.2. Évolution de la PL en fonction de la température du réseau

Aux figures 3.16, 3.17 et 3.18, nous présentons les évolutions des PL en fonction de la température du réseau pour les structures A, B et C, respectivement. Pour les structures A et B, les pics situés à ~ 0. 85 eV et à ~ 1.035 eV (à basse température) correspondent aux transitions C1-HH1 d'électrons des bandes de conduction vers des trous lourds des bandes de valence dans les PQ. L'épaulement, centré approximativement à 1.05 eV, observé dans la PL de B à basse température est assigné à la transition C1-LH1 entre électrons de conduction et trous légers de la bande de valence. Le comportement en température des PL de ces deux structures est typique. Quant à l'évolution de la PL de la structure C, elle n'est pas d'interprétation triviale. En effet, au fur et à mesure que l'on baisse la température du réseau, nous constatons les comportements suivants :

- Le pic à haute énergie (P_2) se déplace vers des positions de plus en plus élevées. Ce pic correspond aux transitions fondamentales C1-HH1 dans les PQ. L'épaulement, centré approximativement à 1.045 eV observé aux basses températures, du côté des hautes énergies de P_2, est assigné à la transition C1-LH1 entre électrons de conduction et trous légers de la bande de valence.

- Vers une température de 100 K, un autre pic à plus basse énergie (P_1) apparaît. Il est centré sur ~ 0.96 eV et sa position n'évolue que très peu avec la baisse de la température. À 6 K, son centre atteint 0.99 eV.

- Le rapport des intensités de PL correspondant à ces deux pics est inversé entre 50 K et 75 K.

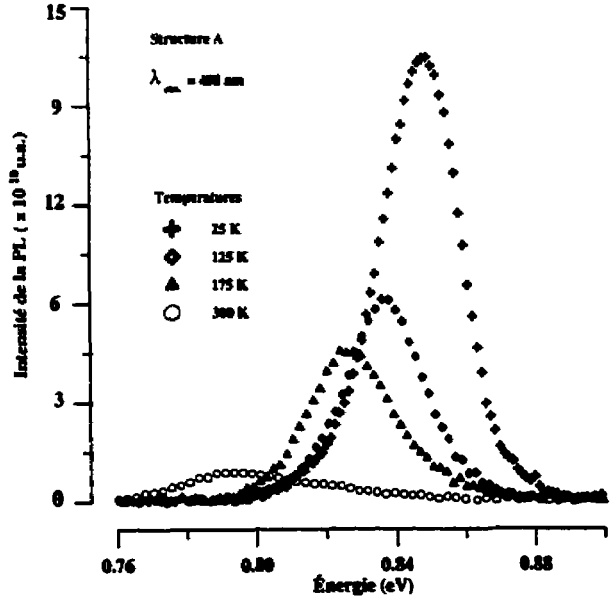


Figure 3.16 : Évolution de la PL issue de la structure A en fonction de la température du réseau.

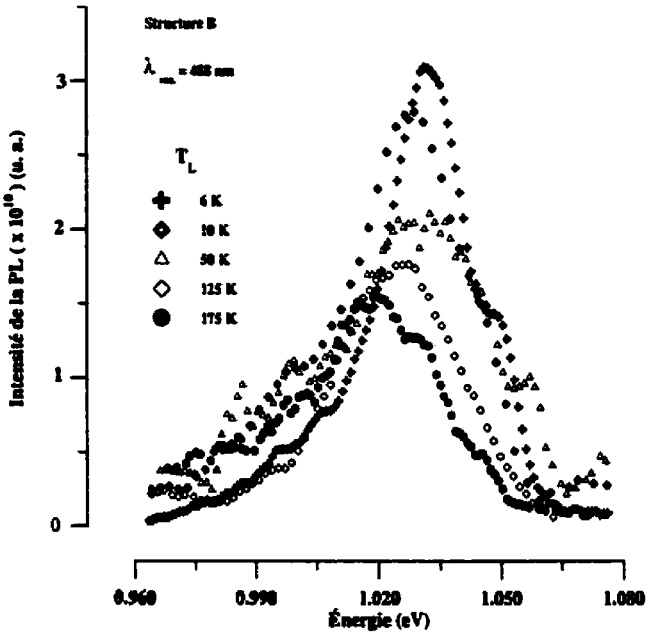


Figure 3.17 : Évolution de la PL issue de la structure B en fonction de la température du réseau.

Nous donnerons des explications à ce comportement dans la section suivante. Pour l'instant, examinons la figure 3.19 qui représente les évolutions des positions des pics des PL en fonction de T_L pour les structures A et C. Selon cette figure, nous constatons que pour une augmentation de T_L de 6 K à 300 K, le gap de la structure A et la position du pic #2 de la structure C baissent de ~ 48 meV et de ~ 58 meV, respectivement. Ce rétrécissement des bandes interdites est similaire à celui de l'InGaAsP massif, et est décrit par l'équation phénoménologique de Varshni [124]:

$$E_{gap}^{InGaAsP}(T_L) = E_{gap}^{InGaAsP}(0) - \alpha \frac{T_L^2}{(\beta + T_L)} \qquad (3.6)$$

où $E_g(0)$ est le gap à 0 K.

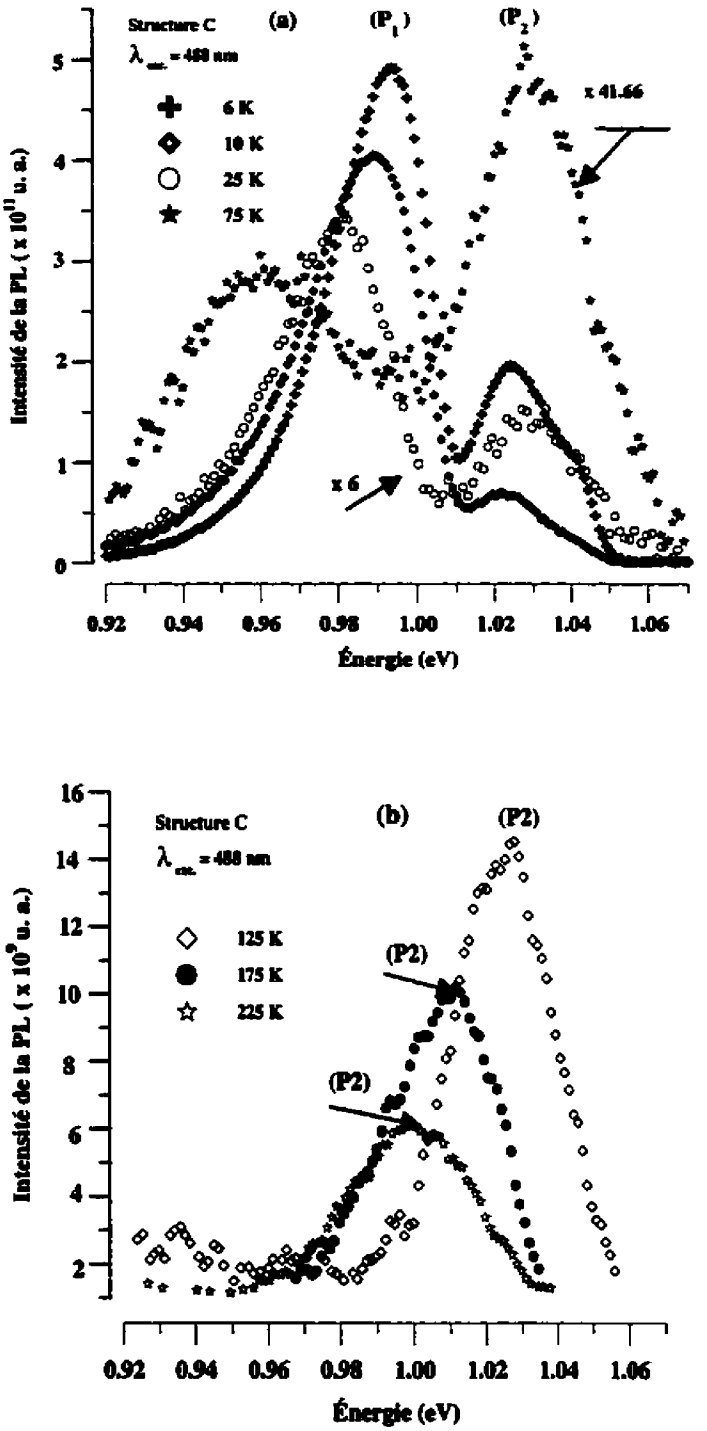


Figure 3.18 : Évolution de la PL issue de la structure C en fonction de la température du réseau.

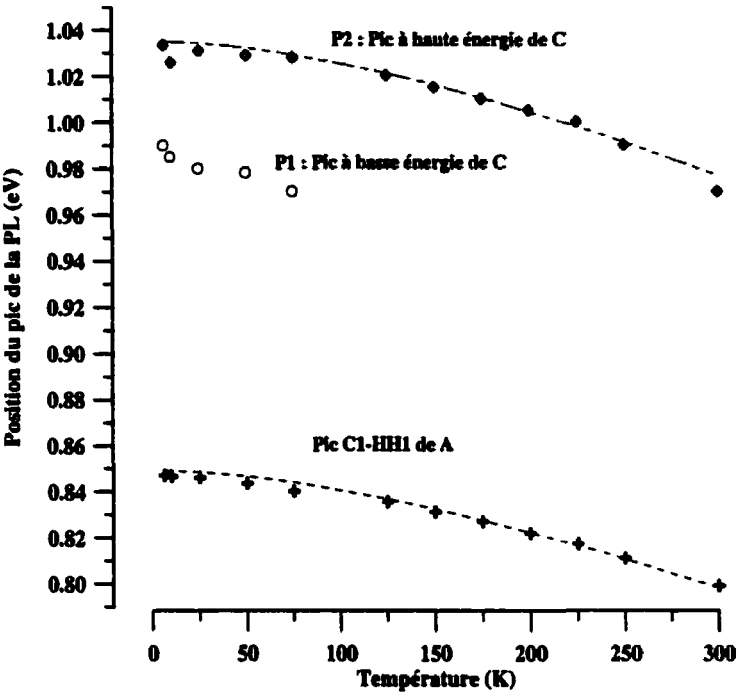


Figure 3.19 : Évolution des positions des pics des PL en fonction des températures des réseaux des structures A et C.

Les lissages des rétrécissements des gaps avec la baisse de T_L, représentés par les pointillés de la figure 3.19, ont donné un β de 320 K et des α qui valent 3.5×10^{-4} et 4×10^{-4} pour les structures A et C, respectivement. La valeur de β, obtenue ici, est bien plus élevée que 136 K nécessaire à la description de la variation du gap de l'InP avec la température [125]. Pour des structures à PQ multiples d'InGaAsP/InP, Temkin et collaborateurs [126] ont rapporté des résultats similaires aux nôtres. Toutefois, d'une publication à l'autre, on peut trouver une légère différence dans la quantité de renormalisation du gap avec la baisse de T_L. Cette différence s'explique par des fluctuations différentes dans les épaisseurs des PQ d'une structure à une autre

L'évolution de la PL issue de la structure C en fonction de la température n'est pas d'interprétation triviale. En effet, comparativement aux autres structures (figures 3.8, 3.9 et 3.10), le comportement optique de C se résume comme suit:

- de façon exceptionnelle, la position de son pic de PL s'est déplacée de ~ 20 meV pour la gamme de densités d'excitation utilisées,
- La position de son pic de PL est toujours plus basse que celle de B,
- les largeurs à mi-hauteur de ses spectres de PL sont toujours plus élevées que celles de B.

De plus, tel que montré à la figure 3.30, les puits quantiques de la structure C absorbent à ~ 1.05 eV à TL = 6 K. l'absorption est de ~ 60 meV plus haute en énergie que la PL (figure 3.18 a). Des anomalies similaires à celles que nous venons d'énumérer ont été observées dans des ternaires et des quaternaires (InGaAs et InGaAsP) par plusieurs groupes de recherche [127-138]. Un tel comportement, a été attribué à la formation de domaines ordonnés résultants d'une occupation préférentielle des sites du réseau cristallin par les atomes qui le constituent [127-138]. Ce mécanisme physique, ayant lieu durant la croissance épitaxiale de l'hétérostructure, a été investigué théoriquement [139-151] et observé expérimentalement par plusieurs techniques telles que la spectroscopie électronique en transmission [152-176] et la diffraction aux rayons X [177-186]. Ce processus est communément appelé "Atomic Ordering". À titre d'exemple, dans des

conditions expérimentales similaires aux nôtres, les résultats de Fouquet et collaborateurs [133] concernant des structures ordonnées se résument comme suit:

- à mesure que l'on augmente la densité d'excitation, le pic de PL se déplace vers les hautes énergies. Ce déplacement varie de 15 à 33 meV,
- l'énergie de la PL est de 70 meV plus basse que celle de l'absorption,
- l'effet d'ordre baisse le gap de la structure et augmente la largeur à mi-hauteur de son spectre de PL.

L'ensemble des constatations basées sur nos mesures or sur ce qui est rapportée par la vaste littérature corrobore l'hypothèse d'existence de domaines ordonnés dans la structure C. Rappelons que les régions actives des structures A, B et C sont constituées de 4, 8 et 12 PQ dont les épaisseurs totales sont de 1120 Å, 1380 Å et 1920 Å, respectivement. Il a été démontré que si l'épaisseur d'une région active (constituée de PQ multiples sous contrainte compressive) dépassait une valeur critique située entre 160 et 360 Å [132-138, 185, 186] des anomalies dans la PL, similaires à ce que nous venons d'observer devraient apparaître. Devant une telle situation, nous avons décidé d'effectuer des caractérisations structurales par diffraction de RX de haute résolution. Nos mesures n'ont pas décelé de domaines ordonnés dans C. Néanmoins, elles nous ont permis d'investiguer d'autres caractéristiques structurales, telles que les compositions des différentes couches et les contraintes associées (chapitre 5). De plus, les résultats obtenus

par diffraction de rayons X excluent la possibilité que le pic de PL à basse énergie, P1, soit dû à des recombinaisons associées à des défauts structuraux.

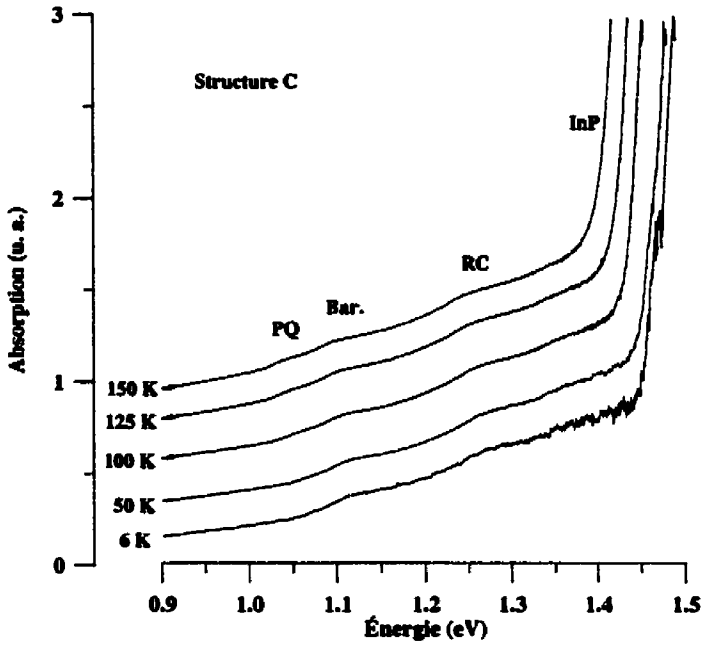


Figure 3.20: Spectre d'absorption en fonction de T_L de la structure C.

Par ailleurs, par des mesures de photoluminescence résolue en temps et réalisées dans des conditions expérimentales semblables, nous avons obtenu des temps de vie de porteurs qui sont de l'ordre de la nanoseconde (chapitre 4). Ce résultat appuie l'hypothèse d'absence de défauts structuraux. Comme autres hypothèses visant à expliquer le comportement de la PL de la structure C, on pourrait penser à des recombinaisons entre des paires donneur-accepteur (DAP) ou à des transitions du type électron-accepteur [133, 187]. En effet, il y a des caractéristiques communes entre le comportement en PL de ce type de recombinaisons et celui que nous venons d'observer pour la structure C. Dans les

deux cas, il y a émission à partir des sous-bandes et la position du pic se déplace vers les hautes énergies à mesure que la densité d'excitation augmente. Nous discuterons, plus en détail, la notion de domaines ordonnés et la nature des donneurs et des accepteurs, lors de l'interprétation des résultats obtenus par diffraction aux rayons X de haute résolution. (chapitres 5).

À la figure 3.21, nous montrons les variations des PL (intégrées en énergie) en fonction de T_L pour les structures A et C. Nous remarquons qu'aux hautes températures, la PL décroît de façon exponentielle. Cette décroissance est attribuée à la relaxation des porteurs par interactions avec des phonons optiques LO. Dans cette gamme de températures, les mécanismes de recombinaisons sont essentiellement non radiatifs. Tout comme pour l'intensité de la PL, le temps de vie des porteurs dépend de la température du réseau. Dans les PQ, ce temps est fonction du temps que mettent les porteurs pour relaxer de façon non radiative (τ_{NR}) et de façon radiative (τ_R). De manière générale, on peut l'écrire sous la forme :

$$\tau(T_L) = \left(\frac{1}{\tau_R(T_L)} + \frac{1}{\tau_{NR}(T_L)} \right)^{-1} \qquad (3.7)$$

En désignant par E_A l'énergie d'activation du processus non radiatif, τ_{NR} peut s'écrire sous la forme [188-190]:

$$\tau_{NR}(T) = \tau_{NR}^{0} \exp\left(\frac{E_A}{k_B T_L}\right) \qquad (3.8)$$

Une estimation de l'énergie d'activation, E_A, peut être obtenue à partir de $I_{PL}(T_L)$ exprimant la variation de l'intensité de la PL intégrée en énergie en fonction de la température du réseau. En effet, le trait pointillé tracé à la figure 3.21 représente l'expression théorique de $I(T_L)$ et qui est donnée par [190]:

$$I(T_L) = I_0 \frac{\tau(T_L)}{\tau_R(T_L)} = \frac{I_0}{1 + \left(\frac{\tau_R(T_L)}{\tau_{NR}^{0}}\right) \exp\left(-\frac{E_A}{k_B T_L}\right)} \qquad (3.9)$$

où τ est le temps de vie global, τ_R est le temps de vie radiatif de l'exciton libre et τ_{NR} le temps de vie associé à un processus non radiatif activé thermiquement. Le terme exponentiel de l'équation 3.9 dépend fortement de la température. Cela nous permet de négliger la dépendance en température de τ_R. Les paramètres obtenus à partir de l'opération de lissage pratiquée sur les points expérimentaux de la figure 3.21 sont consignées dans le tableau 3.4.

L'énergie d'activation des relaxations non radiatives des excitons dans la structure C est plus faible comparativement à celle dans A. Ce résultat est prévisible puisque les PQ dans la structure C sont moins épais que ceux de A. De plus, tel qu'observé par des mesures de photoluminescence résolue en temps (chapitre 4), le temps de vie radiatif des porteurs est de ~ 1.5 ns et de ~ 1.3 ns dans les structures A et C, respectivement. Par

conséquent, τ_{NR}^{0} vaut ~ 2.5 fs et ~ 1.5 fs dans A et C, respectivement. Un temps de vie non radiatif, plus court dans la structure C, s'explique par un recouvrement plus important entre les états des PQ et ceux des barrières dans la structure C possédant des puits quantiques plus étroits comparativement à ceux de A [103] (annexe A).

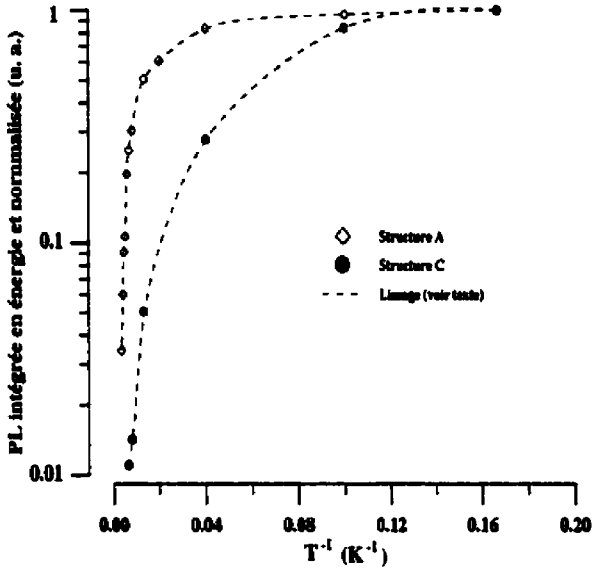


Figure 3.21 : Variations des PL intégrées en énergie en fonction de T_L pour les structures A et C.

Tableau 3.4 : Estimation de l'énergie d'activation des processus non radiatifs et du temps de vie radiatif des porteurs à partir du lissage de $I_{PL}(T_L)$.

Structure	E_A (meV)	τ_R / τ_{NR}^{0}
A	70 ± 10	$(6 \pm 0.2) \times 10^2$
C	45 ± 3	$(8 \pm 0.3) \times 10^2$

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié, à l'aide de la photoluminescence standard les processus de relaxation et de recombinaison de porteurs dans trois structures lasers à puits quantiques multiples. Nous avons montré que la position en énergie du pic de photoluminescence se déplace vers des énergies de plus en plus faibles à mesure que la température du réseau augment. Le déplacement globale résulte de deux processus simultanés et opposés: la diminution du gap (dominant) et le déplacement vers le bleu induit par des fluctuations des épaisseurs. Dans deux hétérostructures sur trois, le déplacement du pic de photoluminescence avec l'augmentation de la température du réseau était typique. Dans la troisième structure, nous avons observé un comportement anomal. Nous avons discuté ce phénomène en termes de transitions donneur-accepteur et en termes de formation de domaines ordonnés au moment de la croissance de la structure. Nous avons montré qu'une inhomogénéité de la composition, une fluctuation de l'épaisseur des puits quantiques ou la présence des centres de piégeages de porteurs réduisent le temps de vie des porteurs et affectent l'efficacité de capture des porteurs par les puits quantiques. Nous avons montré qu'à basse densité d'excitation, la recombinaison des porteurs est essentiellement radiative. Aux fortes densités d'excitations, des processus tels que les recombinaisons Auger, les porteurs chauds, les phonons chauds, l'écrantage des interactions électron-phonon ou le remplissage de bandes deviennent non négligeables. Ces processus réduisent le taux de refroidissement des porteurs ainsi que l'efficacité de leur capture par les puits quantiques.

CHAPITRE 4

Interprétation des résultats obtenus par photoluminescence résolue en temps

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons et analysons les résultats obtenus par photoluminescence résolue en temps. D'abord, nous rappelons brièvement le supplément d'énergie acquis par un porteur suite à une excitation d'un semi-conducteur par des photons. Cela nous amènera à justifier le choix des longueurs utilisées pour exciter les trois hétérostructures laser à puits quantiques multiples. Ensuite, nous abordons le problème de la dynamique des porteurs. Nous évaluerons le temps de transfert de porteurs d'une couche à une autre et le temps de leur capture par les puits quantiques. Les effets de la température du réseau, de la densité d'excitation et de l'énergie d'excitation sur les mécanismes de relaxation des porteurs seront discutés. Nous conclurons ce chapitre par faire le lien entre les propriétés optiques et électriques d'un laser et ses performances en terme de composant opto-électronique de très haute vitesse.

4.2 Énergie acquise par les porteurs suite à une excitation optique

Pour des transitions respectant la conservation de la quantité de mouvement, les suppléments d'énergie acquis par les électrons et les trous dépendent de l'énergie d'excitation. Ces suppléments sont respectivement donnés par [191] :

$$\Delta E_e = \left(h\nu - E_g - E_{1C} - E_{1HH}\right)\frac{m_{hh}}{m_e + m_{hh}} \qquad (4.1)$$

$$\Delta E_h = \left(h\nu - E_g - E_{1C} - E_{1HH}\right) - \Delta E_e \qquad (4.2)$$

où hν est l'énergie d'excitation, E_g est l'énergie de la bande interdite, E_{1C} et E_{1HH} sont les premiers niveaux quantifiés pour les électrons et les trous respectivement. Les masses effectives des électrons et des trous lourds sont symbolisées par m_e et m_{hh} respectivement. En supposant que les bandes sont paraboliques avec des masses effectives [192] $m_e = 0.053\ m_0$ et $m_{hh} = 0.46\ m_0$, on voit aisément que leur rapport dans l'équation 4.1 indique que 90 % du supplément d'énergie est transféré aux électrons. De plus, telle qu'obtenue par interpolation entre binaires [192], la séparation entre les vallées Γ et L de la bande de conduction dans un alliage d'InGaAsP est $\Delta_{\Gamma L} = 0.56$ eV.

Les longueurs d'ondes d'excitation que nous avons utilisées dans nos mesures par photoluminescence résolue en temps (TRPL) sont : λ = 740 nm, λ = 820 nm et λ = 880 nm. Les énergies d'excitation correspondantes sont : 1.675 eV, 1.511 eV et 1.408 eV,

respectivement. Considérée dans cet ordre, chacune de ces énergies est soit beaucoup plus élevée, soit un peu plus élevée, soit plus basse que la bande interdite de l'InP à des températures de 18 K ou 77 K. Conséquemment, avec ces différentes énergies d'excitation on s'attend à : (1) pouvoir inclure et exclure, éventuellement, un transfert de porteurs entre les vallées Γ et L de l'InGaAsP; (2) inclure et exclure le processus de transport de porteurs dans la couche tampon d'InP.

4.2.1 Résultats d'une excitation à λ = 740 nm (1.675 eV)

Une excitation à cette longueur d'onde génère des porteurs dans la couche tampon d'InP, dans les régions de confinement (RC) et dans les puits quantiques (PQ). Cependant, sachant que la couche tampon d'InP est assez épaisse (15000 Å), la plus importante population de porteurs générée par pompage optique y apparaît. Une partie de ces porteurs s'y recombine et l'autre partie diffuse d'abord vers la région de confinement, et puis, vers les puits quantiques. Aux figures 4.1, 4.2 et 4.3, nous montrons des spectres typiques de photoluminescence, à différents délais, des structures A, B et C respectivement. La densité d'excitation et la température du réseau (T_L) sont de 1000 W/cm^2 et 77 K, respectivement.

Les pics à basses énergies, situés à ≈ 0.86 eV pour la structure A et à ≈ 1.045 eV pour les structures B et C sont attribués aux transitions entre états fondamentaux 1C-1HH des puits quantiques, telles qu'indiquées à la figure 1.2 (du chapitre 1). Le pic à haute

énergie, centré à 1.43 eV (± 10 meV), est attribué aux recombinaisons dans la couche tampon d'InP. Les régions de confinement et les barrières émettent à des énergies intermédiaires.

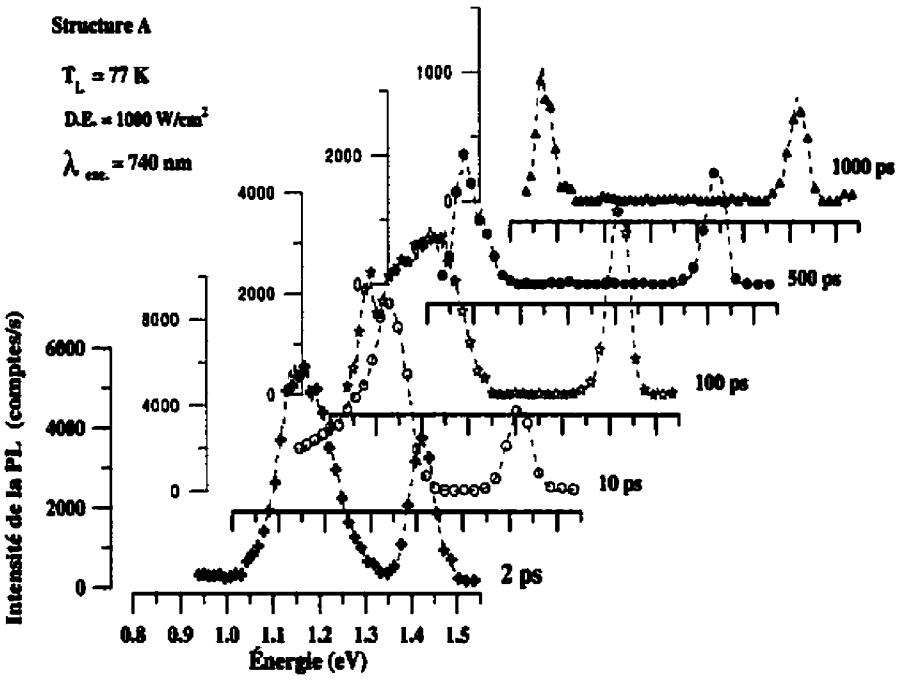


Figure 4.1 : Spectres de PL résolue en temps de la structure A, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K.

En examinant les figures 4.1, 4.2 et 4.3, on constate que le centre du pic de la PL provenant des régions de confinement se déplace, avec le temps, vers les plus basses énergies. En effet, aussi bien la forme de la luminescence que l'intensité de chaque pic suggèrent un déplacement de porteurs de la couche de confinement vers les puits quantiques.

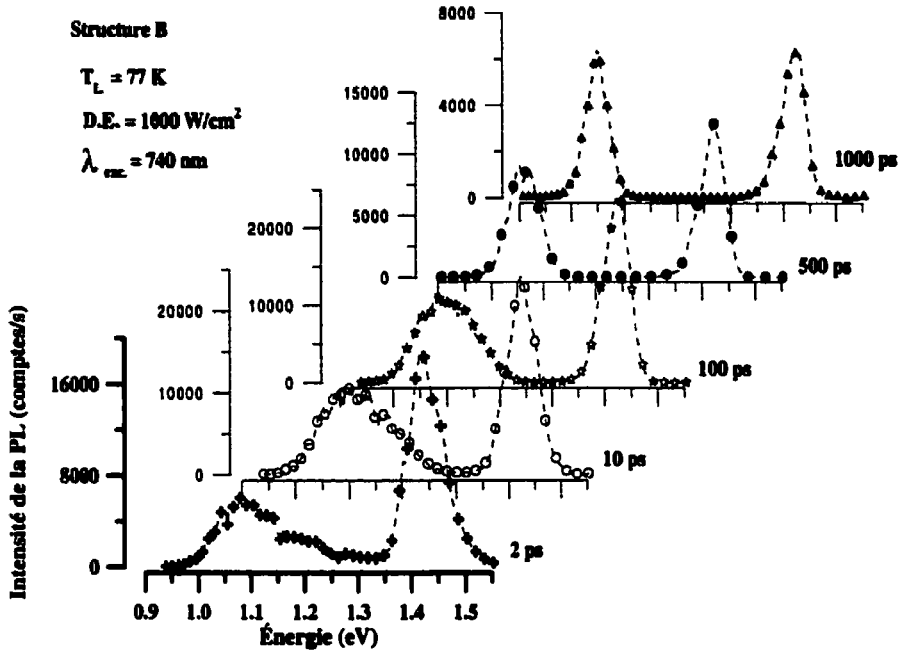


Figure 4.2 : Spectres de photoluminescence résolue dans le temps de la structure B, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et $T_L = 77$ K.

Pour des délais relativement courts et pour une énergie de détection donnée, la population de chaque type de porteurs est composée de deux parties : (i) des porteurs créés sur place et (ii) des porteurs provenant de régions autres que celles où ils ont été générés. Ceci explique le changement de formes (largeur de raie) et d'intensités des luminescences aux diverses énergies. Deveaud et collaborateurs [193] ont étudié le transport de porteurs dans des supra-réseaux en escalier (de différentes périodes) constitués d'AlGaAs déposé sur du GaAs. Pour le supra-réseau ayant la plus petite période (20 Å/20 Å) et pour une densité d'excitation correspondant à une concentration de paires électron-trou, $N_{eh} \sim 10^{17}$ cm^{-3} (supérieure à celle d'un dopage résiduel), Deveaud et collaborateurs [193] ont qualifié le transport de porteurs d'être vertical (transport de Block) et ambipolaire. Cela

implique que la luminescence n'est observable que dans les régions où les deux types de porteurs sont présents et que la longueur du libre parcours moyen des trous est plus grande que la période du supra-réseau [193]. D'un autre côté, Forest et collaborateurs [194] suggèrent que dans les systèmes d'InGaAsP/InP, le transport soit contrôlé par les trous. Les deux raisons principales qu'ils ont invoquées sont les suivantes: (i) la discontinuité entre bandes de valence est plus grande que celle entre bandes de conduction (puits des trous plus profonds); (ii) à cause de leur plus grande masse effective, les trous sont plus lents que les électrons dans les puits quantiques et dans les régions de confinement.

Quant à notre opinion de la question, basée des simulations Monte Carlo [195] (annexe B) des résultats expérimentaux de la figure 4.1, elle se résume comme suit. Dix picosecondes après l'excitation par une impulsion laser, les densités de porteurs (électrons et trous) atteignent leur maximum dans les PQ. À cause d'une masse effective plus élevée pour les trous, la condition de neutralité de charges n'est pas satisfaite dans les PQ et la densité de trous y est 1.5 fois plus grande que celle des électrons. De plus, nous avons montré (figures 4 et 5 de l'annexe B ou de la référence [195]) que la densité moyenne des trous demeure supérieure à la densité moyenne des électrons pour une durée de temps dépassant les 100 ps. Tenant compte de ce résultat et du fait que les trous sont excités à des énergies plus basses que celles des électrons, nous avons conclu le temps de capture des deux types de particules est le même. Dans les barrières, l'intensité des recombinaisons radiatives est faible et la densité de porteurs décroît plus rapidement que

dans les PQ. Cela s'explique par un transfert rapide de porteurs des barrières vers les PQ. Dans ce qui suit, la dynamique des porteurs sera examinée de "plus près" et avec plus de détails.

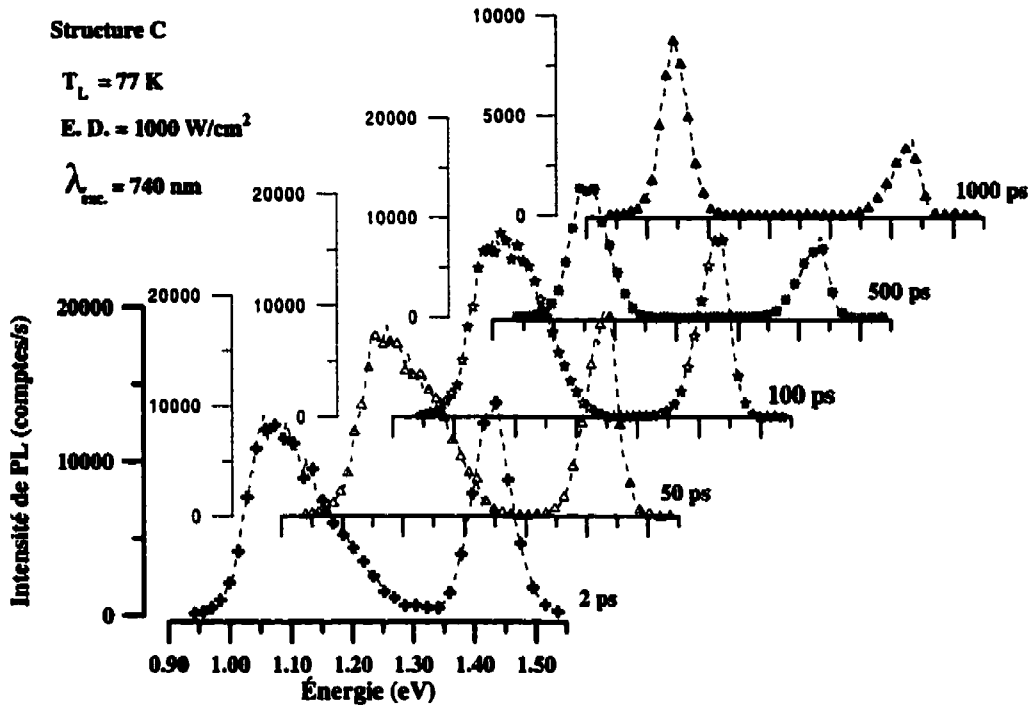


Figure 4.3 : Spectres de photoluminescence résolue dans le temps de la structure C, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K

Afin de mettre en évidence le processus de transfert des porteurs, nous avons évalué les photoluminescences intégrées en énergie, provenant des régions de confinement (PL_{RC}, barrières incluses) et des puits quantiques (PL_{PQ}) et nous les avons comparées à celles des couches tampon d'InP (PL_{InP}). À la figure 4.4, nous montrons l'évolution temporelle de rapports de photoluminescences issues de différentes régions dans la structure C, sous

une densité d'excitation de 1000 W/cm^2 et à T_L = 77 K. Cette figure met en évidence une signature de transport de porteurs de la couche tampon d'InP vers les puits quantiques en passant par la région de confinement.

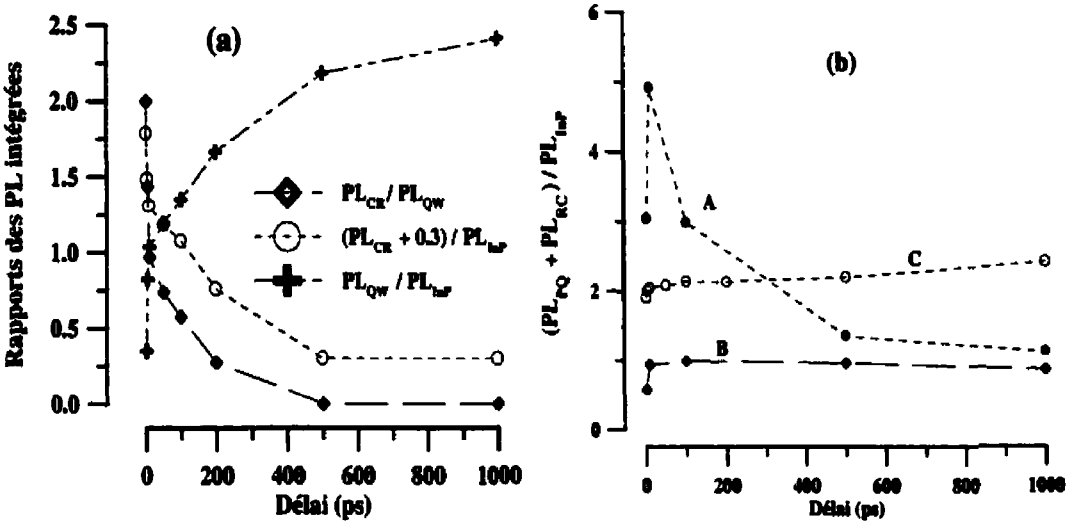


Figure 4.4 : (a) Rapports de PL intégrée en énergie provenant de différentes régions de la structure C. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K. Le 0.3 exprime un décalage pour une meilleure visibilité. (b) Évolution temporelle des rapports de PL, $(PL_{PQ} + PL_{RC})/PL_{InP}$, dans les trois structures A, B, et C.

À la figure 4.4b, nous montrons l'évolution temporelle des rapports de photoluminescences intégrées en énergie, $(PL_{PQ} + PL_{RC})/PL_{InP}$, dans les structures A, B et C. La densité d'excitation était de 1000 W/cm^2 et la température du réseau était de 77 K. En examinant la figure 4.5 et les spectres montrés aux figures 4.1, 4.2 et 4.3, nous constatons ce qui suit : (i) pour des délais de l'ordre de 10 ps, le rapport $(PL_{PQ} + PL_{RC})/PL_{InP}$ dans la structure A est plus élevé que ceux des structures B et C. Ceci est dû

au fait que les épaisseurs totales des structures B et C sont plus petites que celle de A, et alors, le nombre de porteurs photo-excités directement dans la couche tampon d'InP est plus élevé dans les structures B et C. De plus, la région de confinement de A est plus large que celles des structures B et C. Par conséquent, on s'attend à ce que les effets de remplissage de bande (band-filling) et/ou de phonons chauds soient plus prononcés dans les structures B et C. (ii) (PL_{PQ} + PL_{RC}) dans la structure C est toujours plus élevée que PL_{InP}, contrairement à ce qu'on note pour A et B. Ce comportement corrobore les résultats des cinétiques qui seront présentés dans les sections subséquentes. En effet, les temps de montée et de descente de la PL des PQ dans la structure C sont constamment plus petits que ceux observés pour A et B. Voilà une autre caractéristique optique de la structure C qui s'ajoute au comportement anomal de sa PL en fonction de la température et qui n'a pas d'explication triviale.

De nombreux groupes de recherche ont rapporté une amélioration des propriétés de transport, due à la formation de structure ordonnée (disposition régulière d'atomes les uns par rapport aux autres) durant la croissance [139, 159, 162, 164, 168, 170, 172, 173, 175, 176, 185, 186]. Arent et collaborateurs [175] commençaient leur article en disant, et nous citons: "Ordering in III-V semiconductors is of considerable interest as an additional degree of freedom in obtaining high quality optoelectronic materials". Ce genre de déclaration nous a invité à rajouter la diffraction de RX de haute résolution aux techniques de caractérisation préalablement définies. Or, les spectres de diffraction de

RX de la structure C suggèrent une bonne qualité structurale, sans pour autant que des domaines ordonnés ne soient mis en évidence. Nous reviendrons à ce sujet au chapitre 5.

4.2.1.1 Estimation des temps de transport et de capture des porteurs

Dans ce qui suit, nous étudions le comportement dynamique de certaines bandes dans la structure A. Les figures 4.5 et 4.6 montrent des évolutions temporelles des PL issues de différentes transitions observées dans la structure A, sous différentes densités d'excitation (1000 W/cm^2 et 3200 W/cm^2) et à T_L = 77 K. Afin de ne pas encombrer les figures, la fréquence des symboles qui y apparaissent a été réduite. Alors, pour une idée plus précise des temps de montées, le lecteur est prié de se référer au tableau 4.1.

Les différentes énergies de détection dans la figure 4.5a correspondent à la transition fondamentale dans les PQ (PQ-EF, 0.883 eV), à la transitions associé au premier état excité des PQ (PQ-PEE, 0.936 eV) et à la transition dans la couche tampon d'InP (1.423 eV), respectivement. Les énergies de détection qui apparaissent dans la figure 4.5b correspondent à des transitions dans les régions de confinement.

Dans la majorité des cas, nous notons une décroissance exponentielle. En considérant un modèle simple à trois niveaux, nous pouvons simuler les comportements temporels par une différence de deux exponentielles [197]:

$$I_{PL} = I_0 \frac{\tau_d}{\tau_M - \tau_D}\left[\exp\left(-t/\tau_M\right) - \exp\left(-t/\tau_D\right)\right] \quad (4.3)$$

où τ_M et τ_D représentent les temps de montée et de descente de l'intensité de la PL, respectivement. Dans le tableau 4.1, nous résumons les temps de montées et de descentes obtenus selon les meilleurs lissages par l'équation ci-haut.

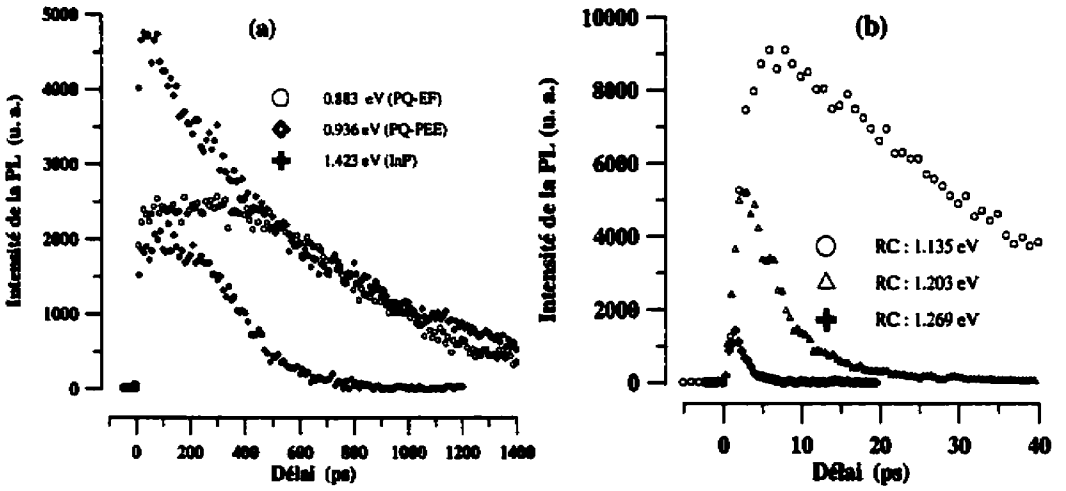


Figure 4.5 : Évolution temporelle de la PL issue de certaines bandes observées dans la structure A. D. E. = 1000 W/cm^2, $\lambda_{exc.}$ = 740 nm et T_L = 77 K, (voir texte).

Le comportement temporel des bandes de la région de confinement montre clairement que cette dernière alimente en porteurs la région active. En effet, la décroissance de la

PL issue des RC et la montée de la PL dans les PQ sont assez rapides. Par conséquent, la relaxation des porteurs est rapide et leur capture par les PQ est efficace.

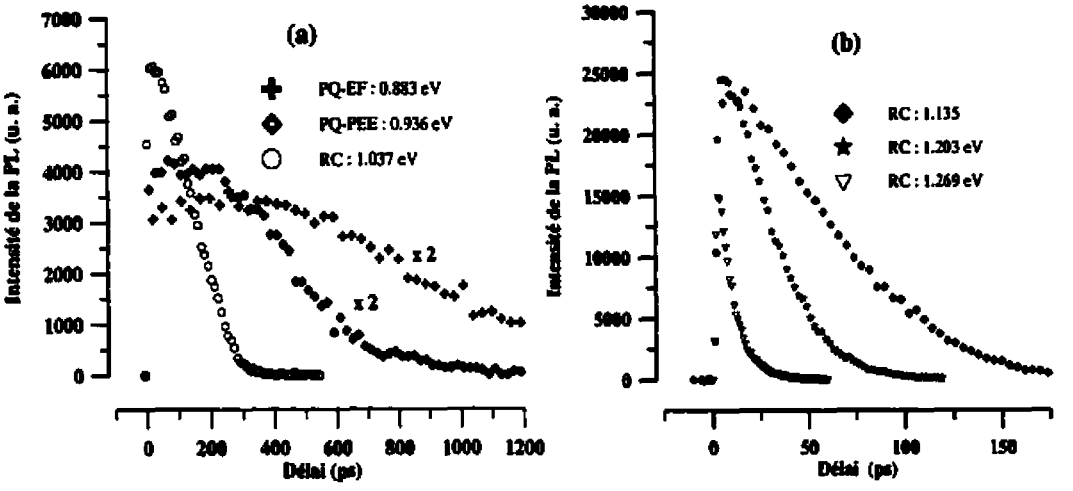


Figure 4.6 : Évolution temporelle de la PL issue de certaines bandes observées dans la structure A. D. E. = 3200 W/cm^2, $\lambda_{exc.}$ = 740 nm et T_L = 77 K, RC = région de confinement.

Tels que consignés dans le tableau 4.1, les temps de montées augmentent continuellement avec la diminution de l'énergie de détection. En effet, pour une densité d'excitation de 1000 W/cm^2, le temps de montée varie de = 1.5 ps dans la région de confinement (1.269 eV), à ≈ 5.5 ps dans les barrières de la région active et atteint ≈ 9 ps dans les PQ. Avant d'être capturés par les PQ, en passant des états à trois dimensions aux états confinés dans les PQ, les porteurs passent par plusieurs régimes de relaxation. Conséquemment, le temps de montée de la PL des PQ inclus: (i) le temps de transport des porteurs à travers les régions de confinement et les barrières, (ii) le temps de relaxation par phonons optiques vers le bord de la bande de conduction, (iii) le temps de relaxation (entre les

sous-bandes), et finalement, (iv) le temps de leur capture par les PQ. Cependant, dans un schéma plus simple, le transfert des porteurs peut être divisé en deux processus séquentiels, qui sont le transport et la capture. Selon ce modèle et pour une densité d'excitation de 1000 W/cm^2, la différence de ~ 4 ps entre les deux premiers temps de montées peut être attribuée au transport de porteurs de la couche tampon d'InP jusqu'au voisinage immédiat du premier PQ. D'autre part, la seconde différence de ~ 3.5 ps entre les temps de montées de la PL des barrières et de celle des PQ peut être interprétée comme un temps de relaxation et de capture. Les barrières sont suffisamment minces pour y négliger le temps de transport [65].

Tableau 4.1 : Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans la Structure A. $\lambda_{exci.} = 740$ nm et $T_L = 77$ K.

		Densité d'excitation			
		1000 W/cm^2		3200 W/cm^2	
Énergie (eV)	Identité	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
0.883	PQ-EF	9 ± 1	900 ∓ 100	12 ± 0.5	1200 ∓ 100
0.936	PQ-PEE	7 ± 0.5	200 ∓ 20	8 ± 0.5	350 ∓ 25
1.037	Bar.	5.5 ± 0.5	70 ∓ 10	6 ± 0.5	120 ∓ 10
1.135	RC	3 ± 0.5	25 ∓ 3	4.5 ± 0.5	50 ∓ 5
1.203	RC	2 ± 0.5	7 ∓ 1	4 ± 0.5	20 ∓ 2
1.269	RC	1.5 ± 0.5	3 ∓ 0.5	2 ± 0.5	8 ∓ 2
1.423	InP	5.5 ± 0.5	750 ∓ 25	7 ± 0.5	800 ∓ 50

Ce temps de capture, ainsi estimé, est en très bon accord avec celui de 4 ps rapporté par Westland et collaborateurs [198] pour InGaAsP/InP. Il est aussi en très bon accord avec le temps de capture de 4.5 ps rapporté pour des amplificateurs optiques à puits quantiques multiples sous contrainte compressive de 1.53 % d'InGaAs (échantillons # 2), émettant à 1,55 μm à la température ambiante [199]. Nous remarquons qu'une augmentation de la densité d'excitation de 1000 W/cm^2 à 3200 W/cm^2, n'affecte que très peu le temps de transport mais augmente substantiellement le temps de capture. En effet, en considérant les même bandes et en suivant le même raisonnement que précédemment, les temps de transport et de capture sont de ~4 ps et de ~ 6 ps, respectivement (D. E. 3200 W/cm^2). Le temps de capture a presque doublé! Plusieurs phénomènes physiques interviennent avant et pendant la capture des porteurs. Entre autres, nous citons les interactions porteur-porteur (e-e, t-t, e-t), porteur-phonon (acoustique ou optique LO or TO) et porteur chaud-phonon chaud. Certains effets de ces interactions seront discutés dans les sections suivantes.

4.2.1.2 Effet d'une baisse de la température du réseau

Les figures 4.7, 4.8 et 4.9 montrent des spectres typiques des structures A, B et C, à différents délais, pour une température du réseau de 18 K et sous une densité d'excitation de 1000 W/cm^2. Une comparaison de ces spectres avec ceux montrés aux figures 4.1, 4.2, 4.3 révèle que les positions des pics associés aux PQ, à la couche tampon d'InP et à aux régions de confinement sont à ~ 6 (± 1) meV plus hautes que ce qu'elles étaient à 77 K. De plus, l'étalement de la luminescence des PQ du côté des hautes énergies est plus faible pour T_L = 18 K. Ce résultat indique que suite à une baisse de la température du réseau, les porteurs se recombinent depuis les états fondamentaux des PQ. Quant aux mécanismes de relaxations à 18 K, nous pensons que les interactions entre porteurs et phonons acoustiques constituent le processus de relaxation dominant. En effet, à 18 K, les électrons se couplent essentiellement aux phonons acoustiques par un potentiel de déformation ou des champs piézoélectriques.

Les figures 4.10 et 4.11 montrent les effets d'une baisse de la température du réseau sur les évolutions temporelles des PL issues des PQ et de deux bandes de la région de confinement dans la structure A. Dans les tableaux 4.2 et 4.3, nous résumons les temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans les structures A, B et C respectivement. Notons que les valeurs du tableau 4.3 vont servir à une comparaison des propriétés optiques et de transport des structures B et C.

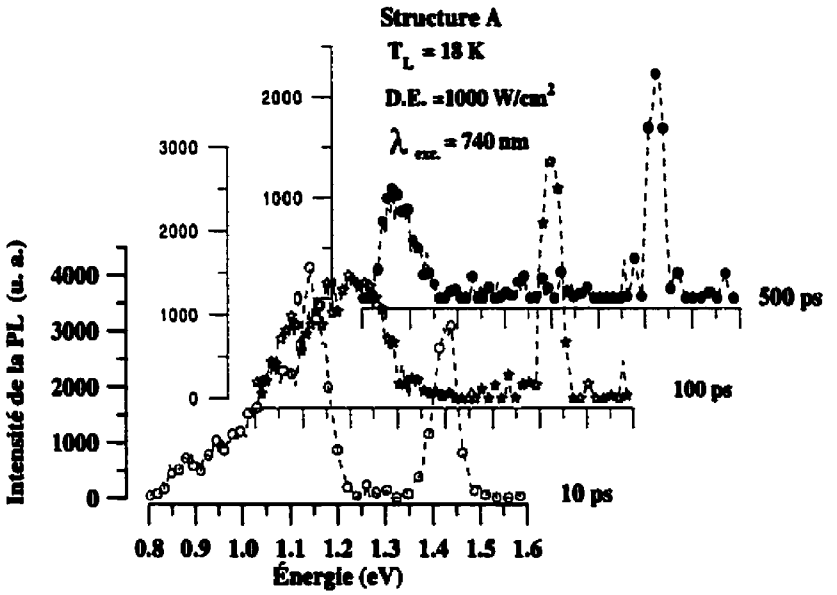


Figure 4.7 : Spectres typiques de la structure A, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.

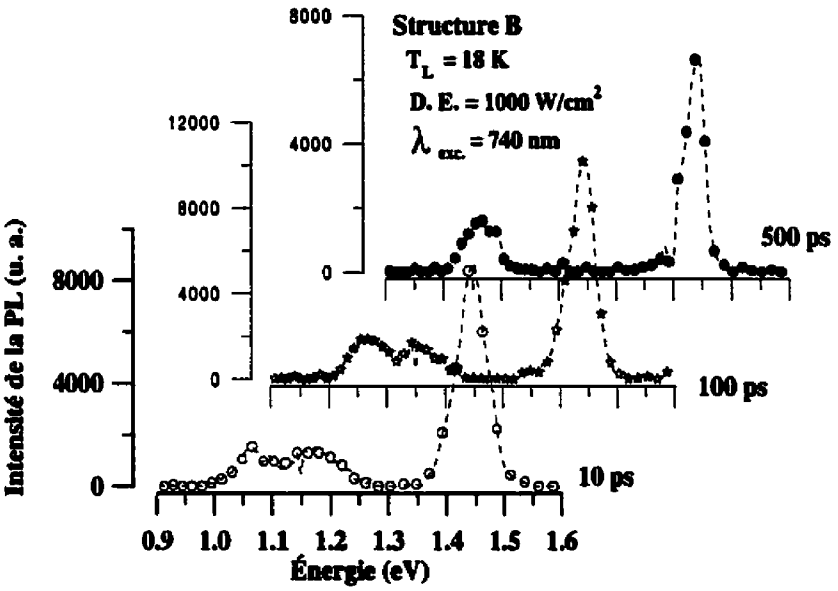


Figure 4.8 : Spectres typiques de la structure B, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.

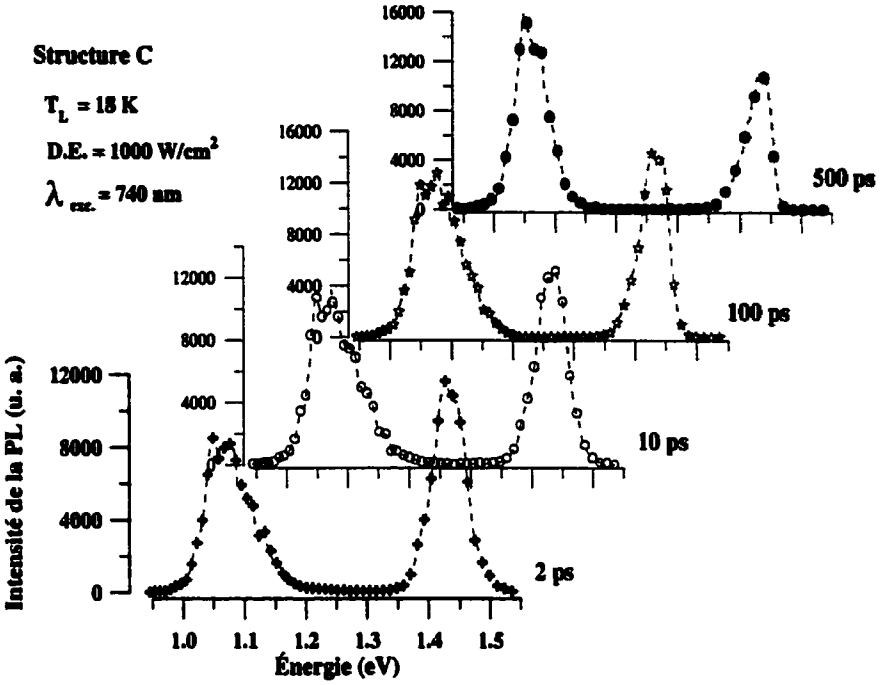


Figure 4.9 : Spectres typiques de la structure C, à différents délais. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.

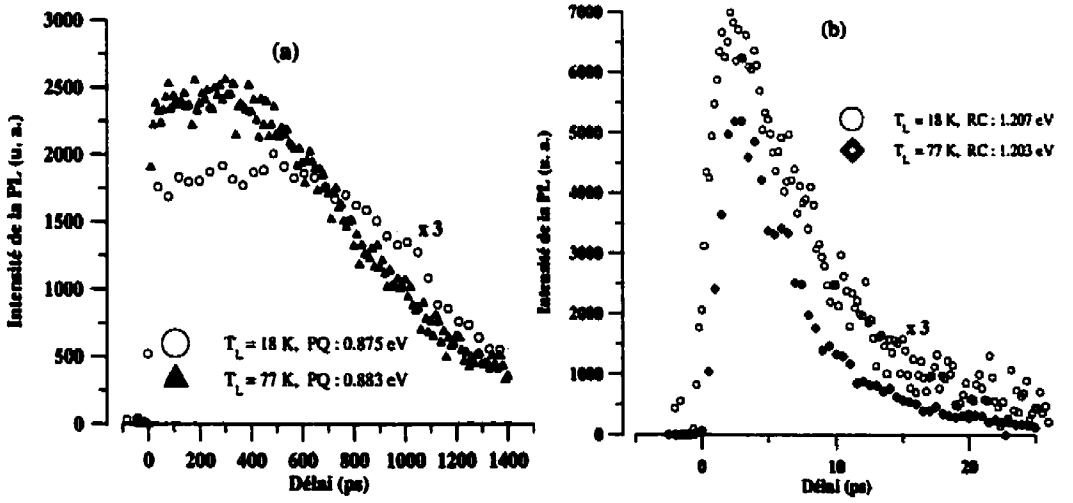


Figure 4.10 : Variation de l'évolution temporelle de la PL issue (a) des PQ de la structure A et (b) d'une bande de la région de confinement avec T_L. La densité d'excitation est de 1000 W/cm^2.

Tableau 4.2 : Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans A. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.

Énergie de détection (eV)	Identité	τ_M (ps)	τ_D (ps)
0.875	PQ-EF*	12 ± 1	900 ∓ 100
0.962	PQ-PEE*	10 ± 2	275 ∓ 25
1.019	Barrières	8 ± 1	100 ∓ 10
1.079	RC*	6 ± 0.5	70 ∓ 10
1.142	RC	3 ± 0.5	35 ∓ 5
1.207	RC	1.5 ± 0.25	8 ∓ 1
1.431	InP	5 ± 0.5	600 ∓ 25

* **Légende** : **PQ-EF** : Transition entre états fondamentaux des PQ; **PQ-PEE** : transition entre premiers états excités des PQ; **RC** : région de confinement.

Tableau 4.3 : Temps de montées et de descentes de certaines bandes observées dans B et C. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 1000 W/cm^2 et T_L = 18 K.

Énergie (eV)	Identité	τ_M (ps)		τ_D (ps)	
		B	C	B	C
1.061	PQ	12 ± 1	10 ∓ 0.5	1150 ± 100	1000 ∓ 100
1.142	RC	10 ± 1	7.5 ∓ 0.5	250 ± 25	210 ∓ 10
1.207	RC	8 ± 0.5	6 ∓ 0.5	75 ± 5	50 ∓ 5
1.262	RC	2 ± 0.25	2 ∓ 0.25	——	35 ∓ 5
1.439	InP	5 ± 0.5	5 ∓ 0.25	750 ± 25	700 ∓ 25

Dans nos structures, les valeurs des bandes interdites des régions de confinement sont très rapprochées. Il n'est donc pas facile de se fixer une énergie donnée dans une bande et d'observer sa cinétique en fonction de la température car la position en énergie de cette bande change avec la température. Toutefois, sachant que plus l'énergie de la bande considérée est grande plus le temps de descente de sa PL est court, on voit qu'en baissant la température de 77 K à 18 K, les temps de descentes de la PL issue des PQ, des barrières, des couches de confinement et de l'InP n'ont sensiblement pas changé (voir tableaux 4.1 et 4.2 pour la même densité d'excitation, 1000 W/cm^2). Notons que les recombinaisons non radiatives du type Auger sont supposées négligeables pour une densité d'excitation de 1000 W/cm^2 correspondant à une concentration de porteurs estimée à ~ $4.45 \times 10^{+12}$ cm^{-3} [200], (voir aussi le tableau 3.1 du chapitre 3). Le fait que le temps de vie des porteurs ne change pas entre T_L = 18 K et T_L = 77 K indique que les recombinaisons radiatives sont du type bande-à-bande et non du type excitonique. En effet, Wang et collaborateurs [201] ont montré que le temps de vie des excitons dans un PQ d'InGaAs/GaAs a augmenté avec l'élévation graduelle de la température du réseau de ~ 4K à 50 K. Ce résultat a été interprété par une diminution de la population d'excitons causée par un élargissement de leur distribution autour de k = 0 (minimum de la bande de conduction). Rappelons toutefois, que notre estimation du temps de vie n'est qu'approximative et que toute interprétation basée sur les valeurs que nous avons obtenues doit être faite avec une certaine précaution. En effet, le modèle à trois niveaux (équation 4.3) n'est pas approprié dans le cas de saturation des PQ, car dans un tel cas, il

faut plus que deux constantes de temps pour lisser les courbes temporelles. Nous parlerons de la saturation des PQ et de ses conséquences dans les sections suivantes.

Intéressons-nous maintenant aux temps de montées de la PL. Une comparaison des valeurs consignées dans les tableaux 4.1 et 4.2 nous montrent que les temps de montées de la PL des PQ et de celle des barrières ont augmenté considérablement suite à une baisse de la température du réseau. Les temps de montées associés à la PL de la couche tampon d'InP et à la PL des régions de confinement proches des PQ n'ont augmenté que très peu (0.5 à 1 ps). Ce résultat indique une diminution de la mobilité due à un effet de localisation des fonctions d'ondes causée par des fluctuations des épaisseurs des couches ou par des imperfections d'interfaces [202, 203]. Nous discuterons les propriétés structurales au chapitre 5. Nous passons maintenant à une comparaison de la dynamique des porteurs dans les structures B et C qui ne diffèrent que par le nombre de PQ (8 PQ dans B et 12 PQ dans C).

La figure 4.11 montre les évolutions temporelles des PL issues des PQ (1.061 eV), de certaines bandes des régions de confinement et de l'InP dans les structures B et C. En examinant la figure 4.11 et les tableaux 4.2 et 4.3, nous notons ce qui suit. (i) Le temps de descente de la couche tampon d'InP dans la structure A est d'une centaine de ps plus court que ses homologues dans les structures B et C. ii) Les temps de descentes des bandes des régions de confinement des trois structures varient dans le sens $\tau_{RCA} < \tau_{RCC} < \tau_{RCB}$. (iii) La PL issue des PQ demeure à son maximum pendant plus de 100 ps. Ce

délai dépasse de beaucoup le temps de transport des porteurs et il ne peut être, non plus, attribué à l'unique effet d'une baisse de la mobilité (due à des fluctuations des épaisseurs des couches). D'ailleurs, on le voyait aussi à 77 K (figure 4.6a).

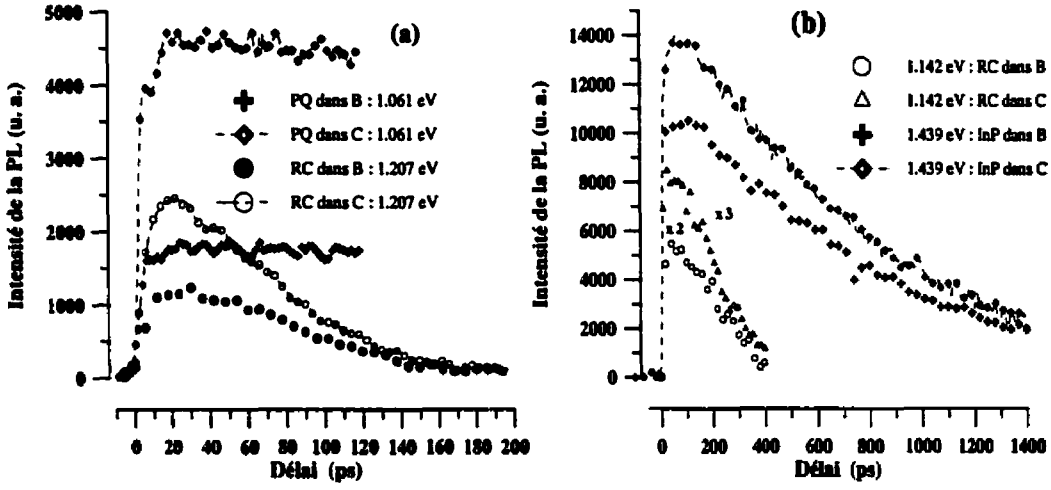


Figure 4.11 : Évolution temporelle de la PL (a) des PQ et d'une bande de la région de confinement (RC), (b) une autre bande de la RC et une bande de l'InP dans les structures B et C. la densité d'excitation est de 1000 W/cm2 et T_L = 18 K.

Le phénomène de remplissage des bandes, suggéré par les spectres, est maintenant confirmé par les cinétiques des bandes. De plus, nous constatons que dans ces conditions expérimentales, les hauts niveaux d'énergies dans les PQ sont remplis. Le processus de transfert de porteurs n'est pas supprimé comme le prétendaient Kersting et collaborateurs [204], mais le nombre de porteurs qui arrivent aux PQ est égal à celui de ceux qui s'en échappent. En effet, à basse température (18 K) la longueur du libre parcours moyen des porteurs augmente. Toutefois, à cause de la forme en escalier (en terme d'énergie) des structures, il est plus "facile " aux porteurs d'arriver aux PQ que de s'en échapper et la

saturation apparaît plus prononcée. L'hypothèse de remplissage de bande est soutenue par l'étude des effets de la densité d'excitation sur les cinétiques de diverses bandes que nous rapportons dans la section suivante.

4.2.1.3 Effets d'une variation la densité d'excitation sur les cinétiques de certaines bandes

Les figures 4.12, 4.13 et 4.14 représentent des spectres typiques des structures A, B, et C, à différents délais et pour des densités d'excitation diverses. La température du réseau était maintenue à 18 K.

D'après les spectres, nous remarquons que suite à une augmentation de la densité d'excitation, la relaxation des porteurs dans les régions de confinement et leur transfert vers les PQ deviennent de plus en plus lents. Les régions de confinement ne se vident pas complètement dans les PQ durant des délais qui dépassent les 100 ps. Les figures 4.15 et 4.16 montrent l'influence de la densité d'excitation sur les évolutions temporelles des PL issues de deux bandes de la région de confinement (1.079 et 1.207 eV) de la structure A, des PQ (1.061 eV) et de certaines bandes des régions de confinement dans les structures B et C, respectivement. La température du réseau est maintenue à 18 K. Dans les tableau 4.4 et 4.5, nous reportons les valeurs des temps de montées et de descentes de diverses bandes observées dans les structures A, B et C pour une densité d'excitation est de 5100 W/cm^2.

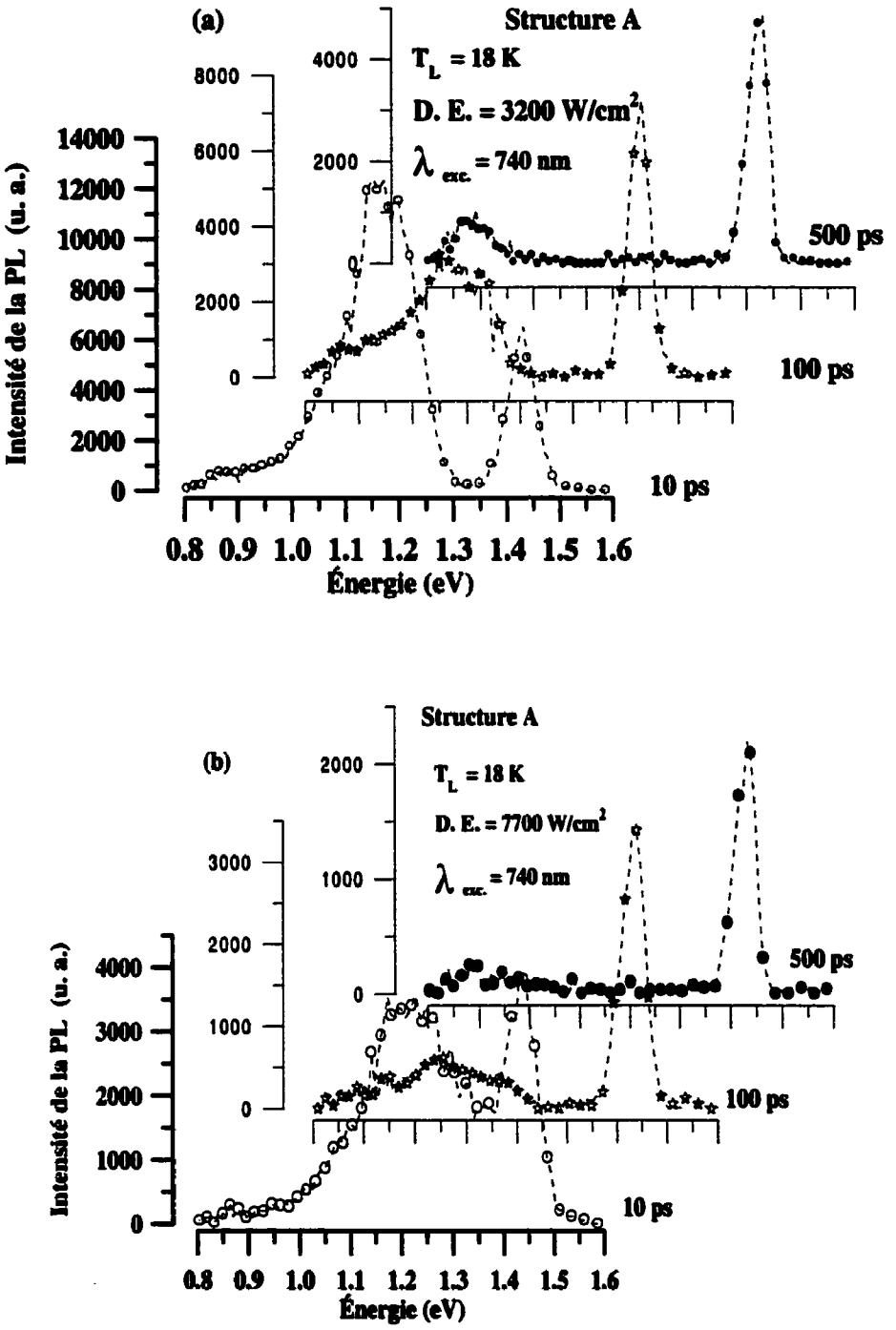


Figure 4.12 : Spectres résolus en temps de la structure A pour différentes densités d'excitation : (a) 3200 W/cm^2, (b) 7700 W/cm^2. T_L = 18 K.

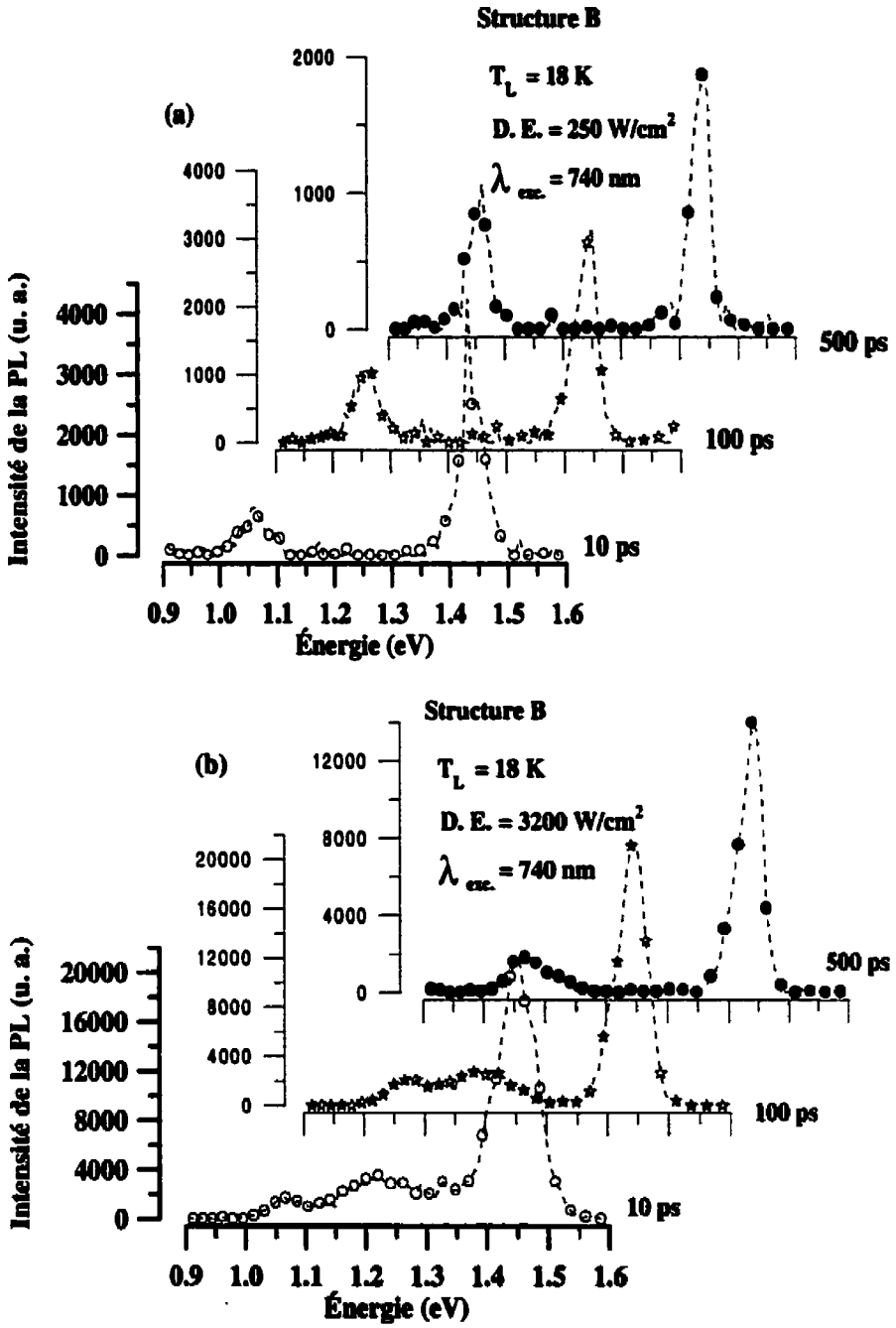


Figure 4.13 : Spectres résolus dans le temps de la structure B pour différentes densités d'excitation : (a) 250 W/cm^2, (b) 3200 W/cm^2. T_L = 18 K.

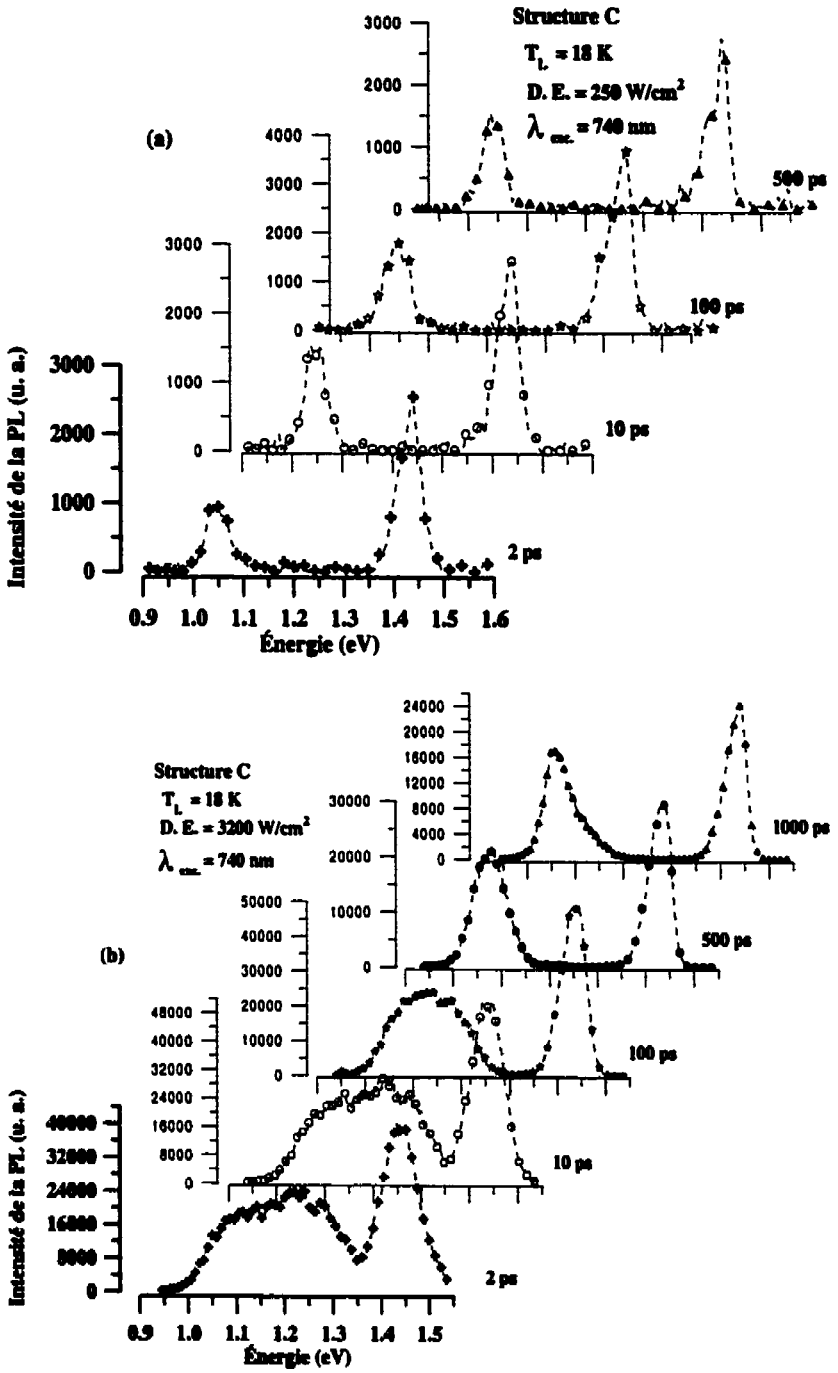


Figure 4.14 : Spectres résolus dans le temps de la structure C pour différentes densités d'excitation : (a) 250 W/cm^2, (b) 3200 W/cm^2. T_L = 18 K.

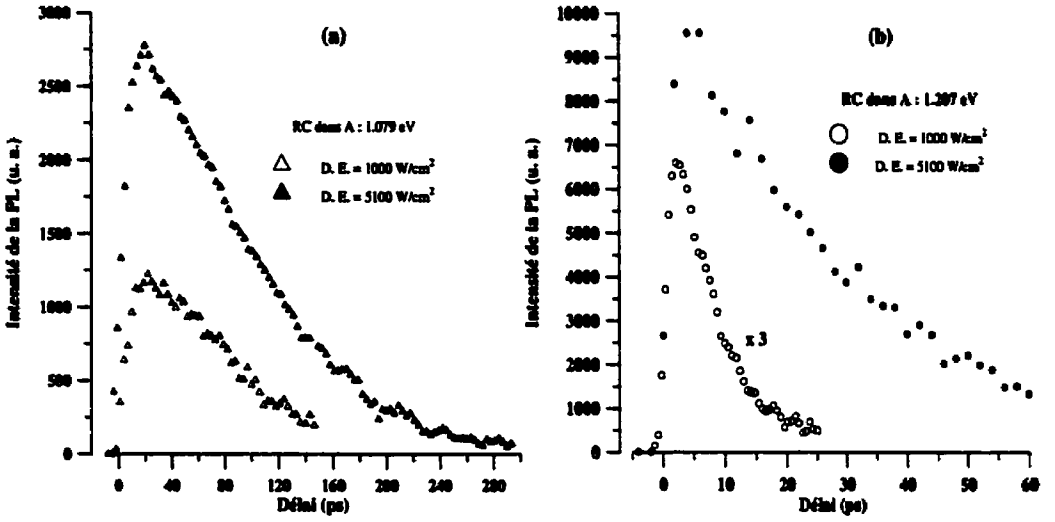


Figure 4.15 : Influence de la densité d'excitation sur la cinétique de bandes de la RC (1.079 eV et 1.207 eV) de la structure A. T_L = 18 K.

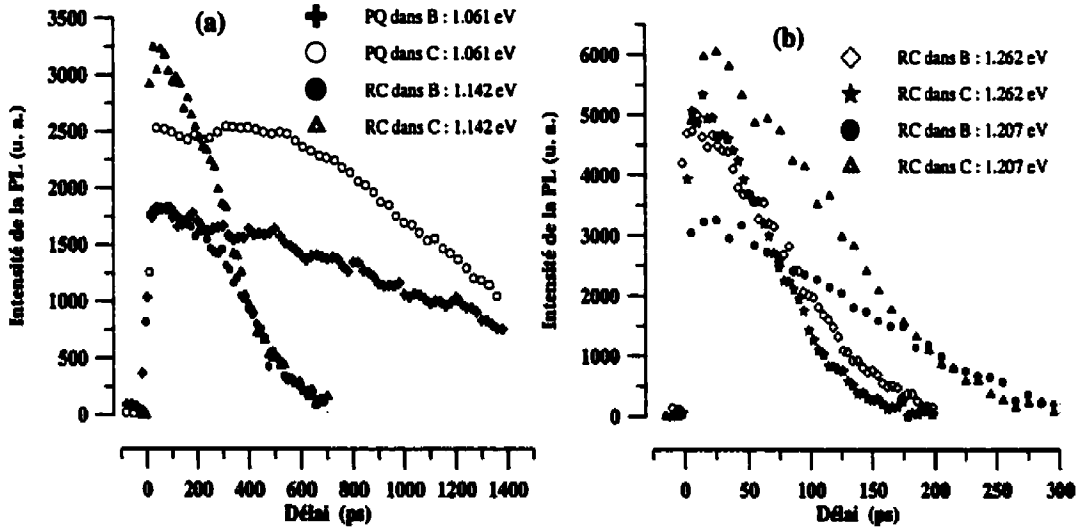


Figure 4.16 : (a) Cinétiques des PQ (1.061 eV) et d'une bande de la région de confinement (1.142 eV), (b) cinétiques de bandes de la région de confinement (1.207 eV, 1.262 eV) dans les structures B et C. D. E. = 5100 W/cm^2 et T_L = 18 K.

Tableau 4.4 : Temps de montées et descentes de certaines bandes dans A. λexc. = 740 nm, la densité d'excitation est de 5100 W/cm2 et TL = 18 K. PQ-EF: état fondamental du PQ, PQ-PEF: premier état excité du PQ, et Bar: barrière

Énergie de détection (eV)	Identité	τ_M (ps)	τ_D (ps)
0.875	PQ-EF	25 ± 2	1300 ∓ 100
0.962	PQ-PEE	18 ± 0.5	375 ∓ 20
1.019	Barrières	10 ± 0.5	125 ∓ 10
1.079	RC	7 ± 0.5	75 ∓ 5
1.142	RC	4 ± 0.5	55 ∓ 5
1.207	RC	3 ± 0.25	28 ∓ 1
1.431	InP	6 ± 1	900 ∓ 50

Tableau 4.5 : Temps de montées et descentes de certaines bandes observées dans B et C. $\lambda_{exc.}$ = 740 nm, la densité d'excitation est de 5100 W/cm^2 et T_L = 18 K.

Énergie de Détection (eV)	Identité	τ_M (ps)		τ_D (ps)	
		B	C	B	C
1.061	PQ	15 ± 2	12 ∓ 1	1500 ± 100	1200 ∓ 100
1.142	RC/Bar	12 ± 1	9 ∓ 1	275 ± 20	240 ∓ 20
1.207	RC	8 ± 0.5	6 ∓ 0.5	120 ± 10	75 ∓ 10
1.262	RC	3 ± 0.5	2 ∓ 0.5	80 ± 10	50 ∓ 5
1.439	InP	4.5± 0.25	4.5 ∓ 0.5	725 ± 25	710 ∓ 20

En comparant les valeurs des temps de montées et de descentes de la PL consignées dans les tableaux 4.2 et 4.4, 4.3 et 4.5, nous identifions certains effets d'une augmentation de la densité d'excitation. (i) Les temps de montées ont passé de 10 à 18 ps et de 12 à 25 ps pour les états fondamental et excité, respectivement. Les temps de montées de la PL provenant des régions de confinement et des barrières ont augmenté, quant à eux, de 1 à 2 ps. Par ailleurs, selon les valeurs du tableau 4.4, le temps de montée varie de ~ 3 ps dans la région de confinement (1.207 eV) à ~ 18 ps dans les barrières de la région active et atteint ~ 20 ps dans les PQ. Ainsi, les temps de transport et de capture sont de l'ordre de ~ 15 ps et ~ 7 ps, respectivement. Il s'agit d'une augmentation énorme! Nous attribuons ce comportement au phénomène de remplissage de bandes. Afin d'identifier le ou les mécanisme(s) de relaxation, nous avons estimé la température effective des porteurs dans l'InP. La méthode utilisée sera décrite dans la section 4.4. Dans le tableau 4.6 nous montrons les valeurs obtenues pour la structure A. Les conditions expérimentales sont précisées dans le tableau 4.6.

Tableau 4.6: Température effective des porteurs dans l'InP de la structure A. $\lambda_{exc.} = 740$ nm et $T_L = 18$ K.

Délai (ps)	Température effective des porteurs en degré K ($T_C \pm 10$ K)	
	D. E. = 3200 W/cm^2	D. E. = 7700 W/cm^2
2	120	190
100	65	110
500	30	40

Nous remarquons qu'immédiatement après excitation de la structure par une impulsion laser, la température effective des porteurs est, non seulement, plus élevée que la température du réseau (T_L), mais également plus élevée que 40 K. Or, il est généralement admis que pour $T_C \geq 40$ K, les interactions porteur-phonon optique constituent le mécanisme de relaxation principal. Ce processus est rapide. Pour $T_C \leq 40$ K, les porteurs relaxent en interagissant avec les phonons acoustiques; ce processus est plus lent. D'ailleurs, les courbes des cinétiques reflètent différents taux de relaxation. Toutefois, l'évaluation de la contribution de chaque mécanisme de relaxation aux processus de refroidissement des porteurs n'est pas une tache facile dans des conditions de fortes densités d'excitation. En effet, les recombinaisons non radiatives du type Auger, les interactions électron-électron (e-e), électron-trou (e-t), trou-trou (t-t) et l'écrantage des intercations porteur-phonon constituent des mécanismes non négligeables lorsque la densité de porteurs est élevée. Les effets de ces interactions sur la dynamique des porteurs ont été considérées dans nos simulations Monte Carlo [195] (annexe B). Les simulations Monte Carlo des résultats expérimentaux montrés à la figure 4.1 ont donné un taux de recombinaison Auger 20 fois supérieur au taux d'émission spontanée (voir figure 7 de l'annexe B). Nous avons discuté les effets de l'ensemble de ces interactions sur la relaxation des porteurs à l'annexe B [195]. Dans ce qui suit, nous présentons en bref, les éléments saillants de nos résultats.

- Lorsque les interactions porteur-porteur et l'écrantage des intercations porteur-phonon sont négligeables, les électrons atteignent rapidement (dans 5 ps) un équilibre thermique.
- L'écrantage des interactions porteur-phonons réduit de façon significative le taux de relaxation (refroidissement) des porteurs. Pour un délai de 5 ps, l'énergie moyenne des électrons dans les PQ est 12 fois supérieure à sa valeur en l'absence d'écrantage. Ce processus entre en action 0.5 ps après une excitation de l'échantillon par une impulsion laser.
- Les interactions e-e ou h-h n'affectent pas la relaxation des porteurs dans les PQ, mais provoquent une légère augmentation de l'énergie moyenne des électrons dans les barrières.
- L'énergie moyenne des électrons diminue sous l'effet des interactions e-h.

4.2.2 Résultats d'excitations à λ = 820 nm (1.511 eV) et à λ = 880 nm (1.408 eV)

Les bandes de conduction des semi-conducteurs III-V à gap direct possèdent des vallées subsidiaires dans les directions L et X. Suite à une excitation optique de forte énergie, des électrons pourraient acquérir suffisamment d'énergie cinétique pour que leur transfert entre ces vallées devienne possible. Dans cette section, nous nous proposons de réduire le supplément d'énergie communiqué aux porteurs, en excitant les structures avec des impulsions lasers ayant de plus grandes longueurs d'onde. Tout en maintenant la température des réseaux constante (77 K), les trois structures ont été excitées

successivement par des impulsions laser ayant des longueurs d'onde de 820 nm et 880 nm. Les figures 4.17, 4.18 et 4.19 montrent des spectres typiques, à différents délais, des structures A, B et C, respectivement. Les temps de montées et de descentes que nous avons observés suite à une étude des évolutions temporelles des luminescences provenant de diverses bandes d'énergie sont consignées dans les tableaux 4.7 et 4.8 pour A, 4.9 et 4.10 pour B et 4.11 et 4.12 pour C. Les positions des pics de PL ainsi que leurs identités sont les mêmes que celles évoquées dans la section 4.2.1. Une comparaison de ces spectres avec ceux montrés aux figures 4.1, 4.2 et 4.3, obtenus pour la même densité d'excitation et la même température de réseau, mais avec une longueur d'onde d'excitation de 740 nm, nous révèle certaines différences reliées au supplément d'énergie communiqué aux porteurs (essentiellement les électrons).

Pour des délais aussi courts que 2 ps, nous constatons qu'il n'y a plus de luminescence issue des régions de confinement (1.20-1.35 eV) de la structure A (figure 17a). De plus, les émissions radiatives provenant des bandes situées entre 1 et 1.20 eV sont terminées pour un délai de l'ordre de 20 ps. Ceci n'était pas le cas lorsque la structure A était excitée à 740 nm; la luminescence en provenance de cette région se poursuivait jusqu'à un délai dépassant les 100 ps (figure 4.1). En ce qui concerne les structures B et C, contrairement à ce que nous avons obtenu en les excitant à 740 nm, les bandes situées entre 1.10 eV et 1.35 eV n'émettent plus pour un délai ≥ 2 ps (figure 4.18a et 4.19a).

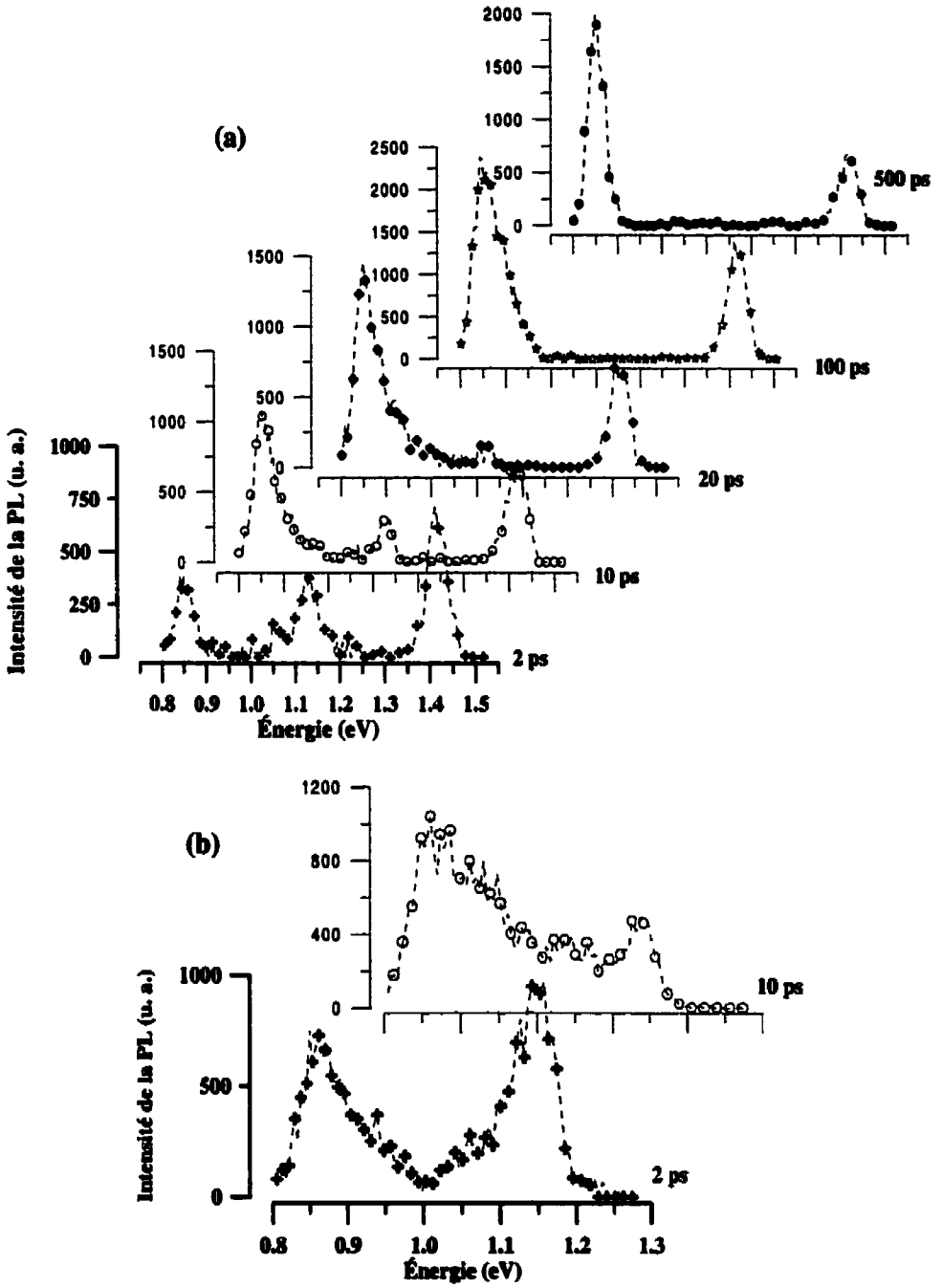


Figure 4.17 : Spectres à différents délais de la structure A, (a) $\lambda_{exci} = 820$ nm, (b) $\lambda_{exci} = 880$ nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et $T_L = 77$ K

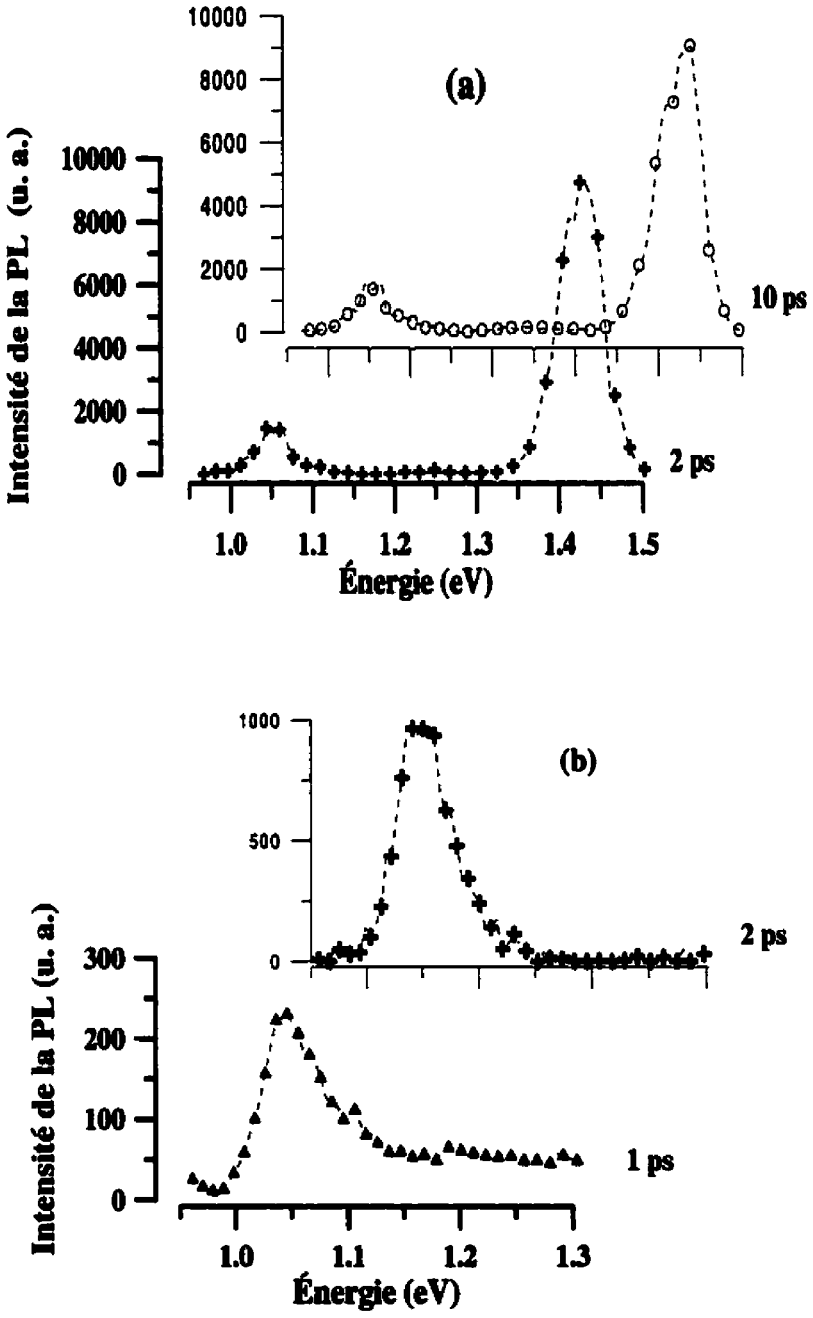


Figure 4.18. : Spectres à différents délais de la structure B, (a) λ_{exci} = 820 nm, (b) λ_{exci} = 880 nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K

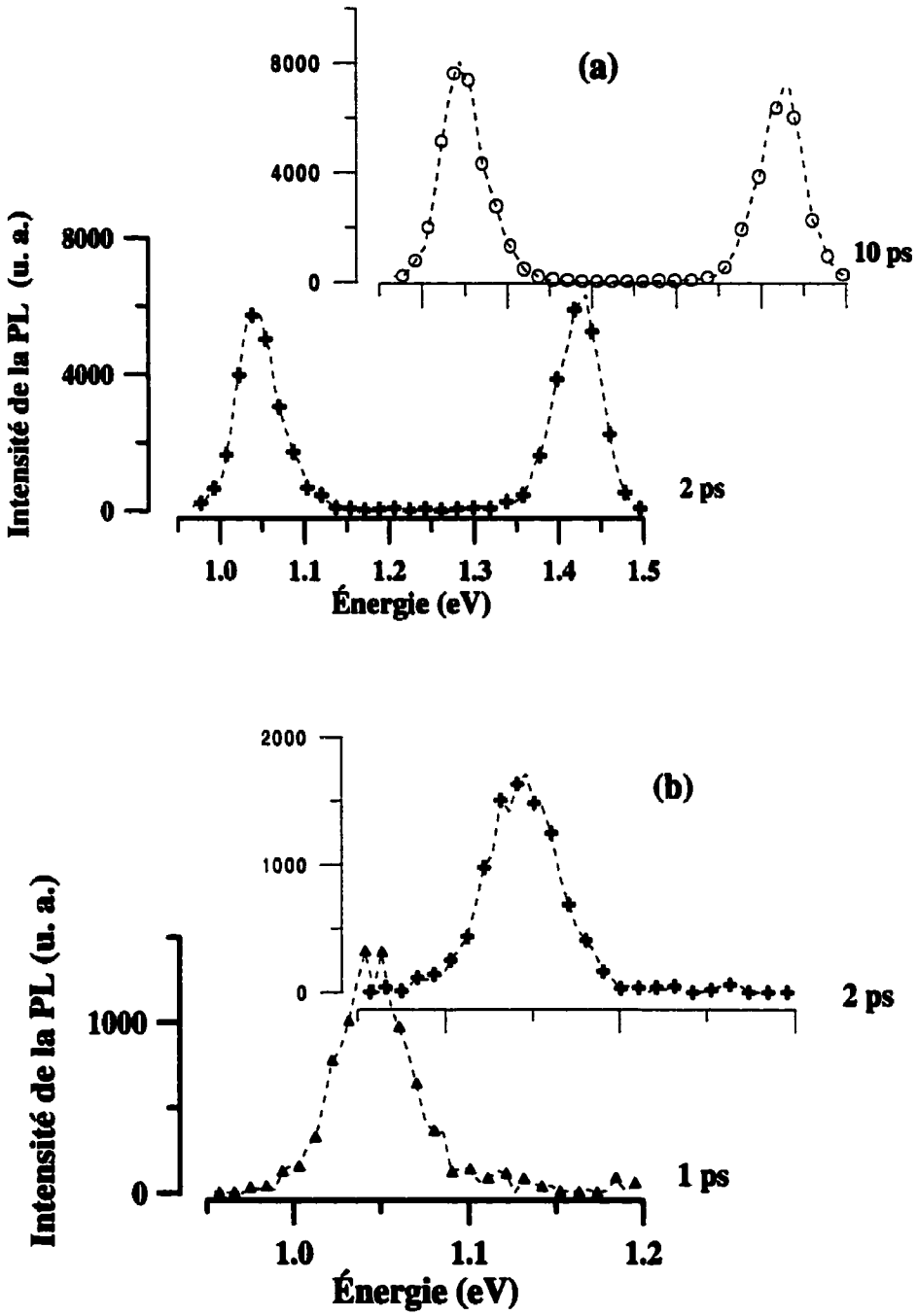


Figure 4.19 : Spectres à différents délais de la structure C, (a) λ_{exci} = 820 nm, (b) λ_{exci} = 880 nm. D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K

Le fait que la luminescence issue des régions de confinement s'achève durant les deux premières picosecondes indique clairement que les processus de relaxation et de transfert des porteurs sont devenus plus rapides avec la diminution de l'énergie d'excitation.. En effet, une comparaison des valeurs consignées dans les tableaux 4.1 et 4.7 nous montre que le temps de descente de la PL issue des régions de confinement ont baissé, de façon significative, avec l'accroissement de la longueur d'onde d'excitation de 720 nm à 820 nm. De plus, selon la densité d'excitation, les temps de montées de la PL des PQ ont baissé de 2 ps à 3 ps environ par rapport à ce qu'ils étaient pour une longueur d'onde d'excitation de 740 nm. S'agit-il d'un moindre effet de phonons chauds ou d'une élimination de l'éventualité d'un transfert de porteurs entre les vallées Γ et L de l'InGaAsP? Dans ce qui suit, nous donnerons des éléments de réponse à cette question.

L'énergie associée à la longueur d'onde d'excitation de 740 nm (1.675 eV) pourrait couvrir le 0.56 eV séparant les vallées Γ et L dans l'InGaAsP de la région active [192] mais pas le 0.61 eV séparant ces mêmes vallées dans l'InP [205]. Par ailleurs, Shah et ses collaborateurs ont établi qu'un tel phénomène est possible dans du GaAs, du InGaAs et de l'InGaAsP [206]. De plus, ils ont estimé un minimum de 100 fs requis pour un transfert d'électrons de Γ vers L et un temps de retour (de L vers Γ) moyen de 2 ps.

Tableau 4.7 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure A. $\lambda_{exci.} = 820$ nm et $T_L = 77$ K.

	Densité d'excitation			
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
0.85 (PQ)	7 ± 0.5	1000 ∓ 100	9 ± 1	1150 ∓ 50
1.131 (RC)	2 ± 0.5	10 ∓ 1	3 ± 0.5	13 ∓ 1
1.411 (InP)	4.5 ± 0.5	700 ∓ 25	6 ± 0.5	725 ∓ 25

Tableau 4.8 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure A. $\lambda_{exci.} = 880$ nm et $T_L = 77$ K.

Densité d'excitation				
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
0.872 (PQ-EF)	6 ± 0.5	600 ∓ 20	7 ± 0.5	750 ∓ 50
1.017 (Bar.)	3 ± 0.25	50 ∓ 5	4.5 ± 0.5	80 ∓ 5
1.137 (RC)	1.5 ± 0.25	12 ∓ 2	1.5 ± 0.25	30 ∓ 2

Tableau 4.9 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure B. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm et T_L = 77 K.

	Densité d'excitation			
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
1.049 (PQ-EF)	7 ± 0.5	950 ∓ 50	8 ± 0.5	1000 ∓ 50
1.113 (PQ-EE)	5 ± 0.5	225 ∓ 25	6 ± 0.5	240 ∓ 10
1.243 (RC)	3 ± 0.5	360 ∓ 20	4 ± 0.5	400 ∓ 25
1.431 (InP)	4 ± 0.5	760 ∓ 30	5 ± 0.5	830 ∓ 20

Tableau 4.10 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure B. $\lambda_{exci.}$ = 880 nm et T_L = 77 K.

Densité d'excitation						
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2		5100 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ (ps)$_D$	τ_M (ps)	τ_D (ps)
1.049 (PQ-EF)	6 ± 0.5	650 ∓ 25	6.5 ± 0.5	700 ∓ 50	7 ± 0.5	900 ∓ 50
1.113 (PQ-PEE)	----	----	5 ± 0.5	120 ∓ 10	5.5 ± 0.5	250 ∓ 10
1.243 (RC)	----	----	0.5 ± 0.25	----	1 ± 0.25	----

Tableau 4.11 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure C. $\lambda_{exci.} = 820$ nm et $T_L = 77$ K.

	Densité d'excitation			
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
1.049 (PQ-EF)	5 ± 0.5	900 ∓ 50	7 ± 0.5	9500 ∓ 100
1.084 (PQ-PEE)	4 ± 0.5	360 ∓ 20	5.5 ± 0.5	430 ∓ 20
1.154 (RC)	3 ± 0.5	120 ∓ 10	4.5 ± 0.5	135 ∓ 10
1.428 (InP)	3 ± 0.5	800 ∓ 20	4 ± 0.5	840 ∓ 10

Tableau 4.12 : Temps de montées et de descentes de la PL de certaines bandes observées dans la structure C. $\lambda_{exci.} = 880$ nm et $T_L = 77$ K.

Densité d'excitation						
	1000 W/cm^2		3200 W/cm^2		5100 W/cm^2	
Énergie (eV)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)	τ_M (ps)	τ_D (ps)
1.049 (PQ-EF)	4 ± 0.5	600 ∓ 10	5.5 ± 0.5	640 ∓ 20	6 ± 0.5	690 ∓ 30
1.113 (PQ-PEE)	----	----	4.5 ± 0.5	120 ∓ 10	5 ± 0.5	135 ∓ 10

D'une longueur d'onde d'excitation à l'autre (de 740 nm à 820 nm), le temps de montée de la PL de l'InP n'a varié que de 0.5 ps environ. Cela confirme qu'il n'y a pas eu de transfert de porteurs entre ses vallées Γ et L. Ce résultat concorde avec celui de Shah et ses collaborateurs [206]. En effet, ils ont affirmé l'absence de transfert d'électrons entre les vallées Γ et L de l'InP excité avec des impulsions laser d'une énergie de 2.04 eV. Quant à la diminution de ~ 2 ps (ou 3 ps) du temps de montée de la PL des PQ, nous ne pouvons l'attribuer, pour l'instant, à une élimination éventuelle d'un transfert de porteurs (excités à 820 nm) entre Γ et L de l'InGaAsP. Nous avons préféré réduire d'avantage l'énergie d'excitation en excitant les structures à 880 nm. Dans ce qui suit, nous analyserons les résultats obtenus.

Les couches d'InP sont transparentes à la longueur d'onde de 880 nm (1.408 eV). L'impulsion laser excite des porteurs dans les régions actives et dans les couches de confinement en escalier. Toutefois, l'éventualité de transfert de porteurs entre les vallées Γ et L de l'InGaAsP est éliminée dans toutes les couches des trois structures A, B et C. Les intensités des PL issues de diverses régions, exprimées en comptes/s, sont plus faibles que celles que nous avons eues avec les énergies d'excitation précédentes. Les figures 4.17b, 4.18b et 4.19b montrent des spectres typiques, à différents délais, des structures A, B et C, respectivement. Nous ne disposons pas de cinétiques de bandes d'énergie, à T_L = 77 K, pour les structures B et C lorsqu'elles étaient excitées par des impulsions à 740 nm. Alors, les résultats contenus dans les tableaux 4.9, 4.10, 4.11 et 4.12 servent d'une part, à discerner une éventuelle différence dans la dynamique des

porteurs d'une structure à l'autre. D'autre part, ils nous permettent d'évaluer toute variation de la dynamique des porteurs accompagnant le changement de la longueur d'onde d'excitation de 820 nm à 880 nm. La figure 4.20 montre l'évolution temporelle de certaines bandes d'énergie observées dans la structure A excitée à 820 nm puis à 880 nm. Nous avons aussi observé la cinétique de plusieurs autres bandes à diverses densités d'excitation. Les résultats sont présentés aux tableaux 4.7 et 4.8.

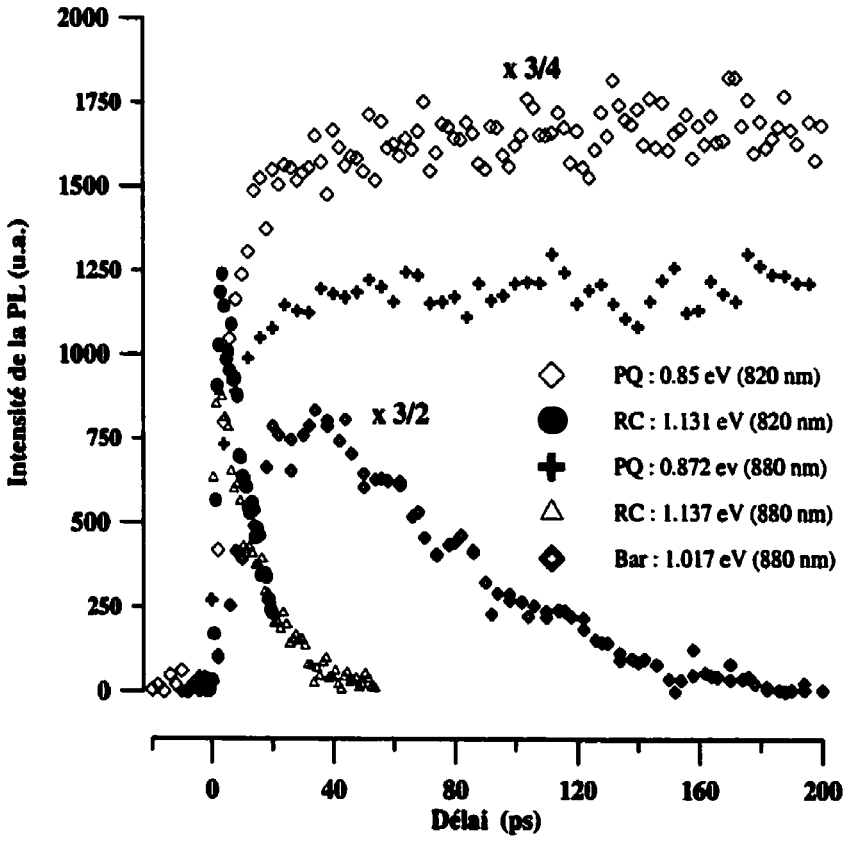


Figure 4.20: Évolution temporelle des PQ et d'une bande de la région de confinement dans A. Les longueurs d'ondes d'excitations sont indiquées entre parenthèse dans la légende. $T_L = 77$ K et D. E. = 1000 W/cm^2.

En augmentant la longueur d'onde d'excitation de 820 nm à 880 nm, nous remarquons que les temps de montées de la PL des PQ de toutes les structures diminuent d'une picoseconde environ. Tandis que pour les temps de descentes des PL, nous enregistrons une baisse significative. Ce résultat est prévisible car augmenter la longueur d'onde d'excitation est équivalent à réduire le supplément d'énergie communiqué aux porteurs. Par émission de phonons LO, les porteurs atteignent un état d'équilibre thermique et se recombinent plus rapidement. Par ailleurs, pour des électrons ayant un certain supplément d'énergie ($> \hbar\omega_{LO}$), le temps requis pour un refroidissement par émission de phonons LO a été estimé à 1 ps [207, 208]. Entendons-nous que le supplément d'énergie mentionné ci-dessus est supposé non suffisant pour causer un transfert Γ-L.

Par contre, en augmentant la longueur d'excitation de 740 nm à 880nm, le temps de montée de la PL des PQ a diminué considérablement (voir tableaux 4.1 et 4.8). Pour la structure A et dans le cas d'une densité d'excitation de 1000 W/cm^2, le temps de montée a passé de 9 ps à 6 ps. Il s'agit d'une diminution de ~ 3 ps (± 1 ps); relativement grande pour être attribuée uniquement à une élimination d'un transfert de porteurs vers les vallées subsidiaires de l'InGaAsP. Nous attribuons cette baisse à deux processus physiques concomitants: (i) une élimination d'un transfert de porteurs vers la vallée satellite L, et (ii) une augmentation du taux de refroidissement des porteurs due à un effet moindre de phonons et/ou de porteurs chauds. En effet, comme le montrons dans la prochaine section, la température effective des porteurs diminue en réduisant l'énergie d'excitation. Par conséquent, en excitant à une plus grande longueur d'onde (880 nm),

nous avons éliminé la possibilité de transfert d'une portion de la population d'électrons vers la vallée satellite L. Comme conséquence, le temps de montée de la PL des puits quantiques a diminué. Cependant, la différence de temps enregistré n'est pas nécessairement le temps de transfert Γ-L. En effet, une excitation à une grande longueur (ici 880 nm) génère des porteurs "pas trop chauds", c'est-à-dire ayant une température effective T_C voisine de celle du réseau T_L. Les effets de phonons chauds et/ou de porteurs chauds sont ainsi amoindris. Il en résulte que le taux de refroidissement des porteurs et l'efficacité de leur capture par les PQ augmente.

Avant de passer à la prochaine section, où nous observerons l'évolution temporelle de la température effective des porteurs, nous allons expliquer brièvement la notion de phonons chauds. Dans une population d'électrons en équilibre thermique avec les phonons, le nombre d'électrons ayant une énergie $E > \hbar\omega_{LO}$ est égal au nombre d'électrons ayant une énergie $E < \hbar\omega_{LO}$. Il en résulte que la distribution d'électrons émet autant de phonons qu'elle en absorbe. Immédiatement, après excitation de ce système (électrons, phonons) par une impulsion laser (énorme quantité d'énergie), les deux constituants sont hors équilibre et le nombre d'électrons ayant une énergie $E > \hbar\omega_{LO}$ est beaucoup plus élevé que le nombre d'électrons ayant une énergie $E < \hbar\omega_{LO}$. On parle de phonons chauds et d'une amplification de leur population, si le taux de leur émission par les porteurs est plus élevé que celui de leur absorption. Ces phonons ont un temps de vie relativement long et leur réabsorption par les porteurs réduit le taux de refroidissement de ces derniers ainsi que l'efficacité de capture des PQ.

4.3 Température effective des porteurs. Porteurs chauds

L'excitation des structures avec des impulsions laser (à 1.675 eV ou 1.511 eV) crée des porteurs chauds dans toutes les couches. Comme nous l'avons précédemment mentionné, les interactions entre les deux types de porteurs (électrons et trous) ne conduisent pas, de façon efficace, à une perte d'énergie du système de porteurs dans son ensemble. Cependant, des interactions entre électron-électron et trou-trou permettent un transfert d'énergie à l'intérieur de chacun des deux sous-systèmes. En effet, nous savons que les électrons et les trous ont des énergies cinétiques moyennes (par particule) différentes. De plus, sachant que le degré d'élasticité est plus faible pour des collisions entre particules de masses égales, l'équilibre thermique au sein de chaque sous système est atteint plus rapidement que celui entre les deux sous systèmes. Les populations d'électrons et de trous peuvent alors être décrites par des distributions de Fermi-Dirac, avec des températures effectives T_e et T_h supérieures à celle du réseau (T_L). Par collisions entre électrons et trous, la température de l'ensemble des porteurs (plasma) converge vers une température unique $T_e = T_h = T_C$ toujours supérieure à T_L. T_C est appelé température effective du plasma, et elle est donnée par [106] :

$$\frac{(m_e + m_h)}{T_C} = \frac{m_e}{T_h} + \frac{m_h}{T_e} \qquad (4.4)$$

où m désigne la masse effective et les indices e et h réfèrent aux électrons et aux trous, respectivement.

Les spectres de photoluminescence résolue dans le temps, obtenus dans les sections précédentes, montrent que les queues à hautes énergies des PL issues de la couche tampon d'InP ont des profils exponentiels. Ce résultat indique que le processus d'équilibre thermique, établi entre porteurs suite à leurs interactions mutuelles, est très rapide. D'ailleurs, son temps caractéristique est de l'ordre de la résolution de notre montage expérimental, soit = 200 fs. La température effective des porteurs (T_C) est inférée à partir de la décroissance exponentielle de l'intensité de la PL, telle que donnée par [209] :

$$I(h\nu) \propto \nu^2 (h\nu - E_g)^{1/2} \exp\left(\frac{-(h\nu - E_g)}{k_B T_C}\right) \qquad (4.5)$$

où hν est l'énergie du photon, $E_g(T_L = 77K) = 1.420$ eV est l'énergie de la bande interdite de l'InP [210] et k_B est la constante de Boltzmann.

En utilisant la relation 4.5, nous avons estimé les températures effectives des porteurs à différents délais. Le tableau 4.13 résume les valeurs obtenues, dans les structures A, B et C maintenues à 77 K. La longueur d'onde et la densité d'excitation étaient de 740 nm et de 3200 W/cm^2, respectivement. D'autres valeurs de T_C, obtenues sous différentes

densités d'excitation ont été publiées ailleurs [211] (voir annexe C). Nous représentons les évolutions temporelles des T_C à la figure 4.21.

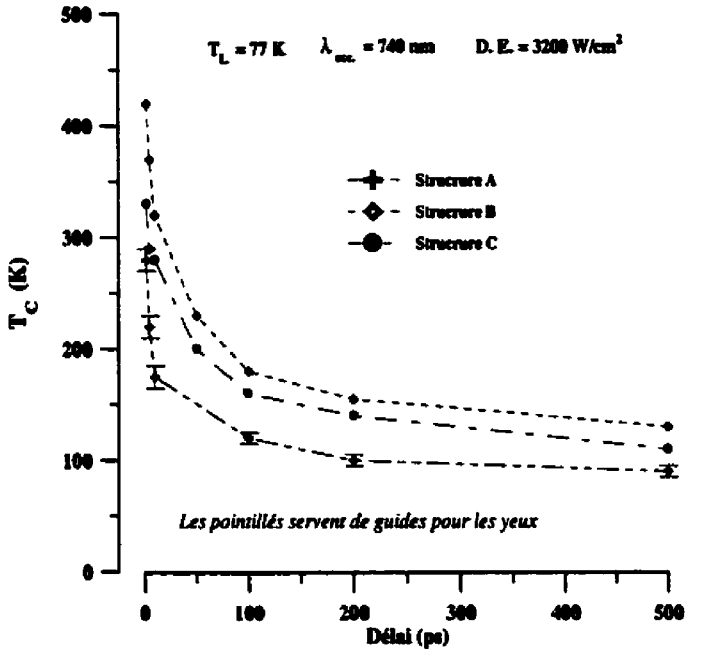


Figure 4.21 : Évolutions temporelles des T_C dans A, B et C. La densité d'excitation est de 3200 W/cm^2, λ_{exci} = 740 nm et T_L = 77 K.

Tableau 4.13 : Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 740 nm, D. E. = 3200 W/cm^2 et T_L = 77 K.

Délais (ps)		2	5	10	100	500	1000
T_C (K) ± 10 K	A	280	220	175	120	90	80
	B	420	370	320	180	130	110
	C	330	290	280	160	110	100

Désignons par T_{CA}, T_{CB} et T_{CC} les températures effectives des porteurs dans les structures A, B et C, respectivement. Pour la plupart des délais, nous constatons que $T_{CB} > T_{CC} > T_{CA}$. Ce résultat appuie l'hypothèse évoquée précédemment, à savoir que l'effet de remplissage de bandes doit être plus prononcé dans la structure B, compte tenu du fait qu'elle possède une région active plus étroite. La densité de porteurs chauds qu'on y retrouve, résultante de photogénération locale et d'un processus de transfert, est très élevée. Cette condition est propice à l'activation du phénomène dit de phonons chauds. Par ailleurs, on remarque qu'aussi bien les températures initiales ($t \leq 5$ ps) que les taux de refroidissement des porteurs sont plus faibles dans l'InP de la structure A. En admettant un comportement similaire de la région active, l'hypothèse d'un transfert de porteurs entre les vallées Γ et L de l'InGaAsP de cette structure se trouve appuyée. Un tel transfert agit comme une source de chaleur [206]. En effet, une fraction substantielle des électrons photogénérés peut être rapidement (~ 100 fs) transférée vers la vallée Γ. Immédiatement après excitation, les porteurs transférés ne participent pas à la luminescence. À cause d'une masse effective plus faible dans la vallée Γ, ces porteurs y reviennent (délai ~ 2 ps) plutôt lentement et réchauffent les électrons locaux. Comme conséquence, le processus de refroidissement est ralenti. En baissant la densité d'excitation et/ou l'énergie d'excitation, les T_C initiales et le taux de refroidissement diminuent. Les tableaux 4.14 et 4.15 résument des évolutions temporelles des T_C pour différentes longueurs d'ondes et densités d'excitation. À la figure 4.22 nous en montrons un exemple.

Sachant qu'une baisse de la densité et/ou de la longueur d'onde d'excitation entraîne une diminution d'énergie communiquée aux porteurs. Ces derniers ne peuvent plus relaxer rapidement par émission de phonons LO n'étant pas suffisamment énergétiques. Ils relaxent alors par d'autres processus beaucoup plus lents, tels que celui par émission de phonons acoustiques.

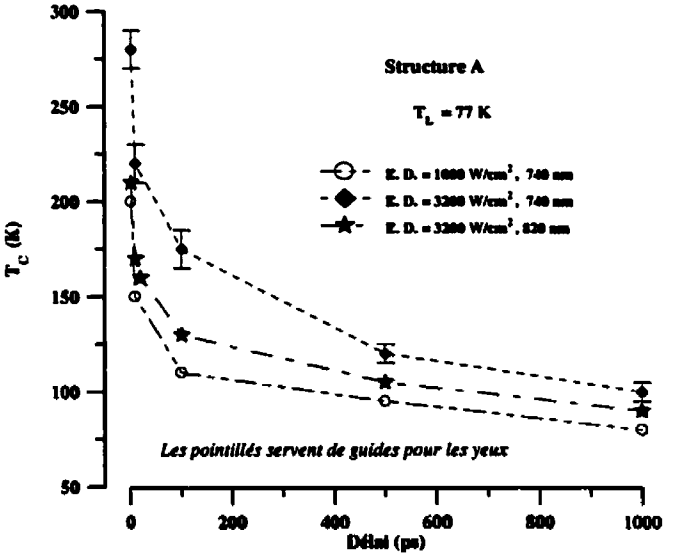


Figure 4.22 : Évolutions temporelles des T_C dans A pour différentes densités et longueurs d'ondes d'excitation. T_L = 77 K.

Tableau 4.14 : Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 740 nm, D. E. = 1000 W/cm^2 et T_L = 77 K.

Délais (ps)		2	5	10	100	500	1000
T_C (K) ± 10 K	A	200	----	150	110	95	80
	B	270	----	210	140	100	80
	C	250	220	190	120	90	80

Tableau 4.15 : Évolutions temporelles des températures effectives des porteurs dans A, B, et C. $\lambda_{exci.}$ = 820 nm, D. E. = 3200 W/cm^2 et T_L = 77 K.

Délais (ps)		2	10	20	100	500	1000
T_C (K) ± 10 K	A	210	170	160	130	105	90
	B	285	220	195	155	115	90
	C	260	200	180	150	110	85

4.4 Lien entre la dynamique des porteurs et les performances d'un laser

Un changement de la densité de porteurs (n) dans la région active d'un laser cause un changement de l'indice de réfraction (N) de la cavité et par le fait même, un changement de la longueur d'onde des modes longitudinaux (piaillement, connu sous le nom de chirp). Par conséquent, toute fluctuation de la densité de photons conduit à une augmentation de la largeur de la raie laser. De façon similaire, toute variation de la concentration de porteurs (n), imposée par la modulation d'un laser, conduit au phénomène de piaillement. Ces deux effets (l'élargissement de la raie et le piaillement) sont indésirables dans un laser émettant à un 1.55 μm, utilisé dans un système dispersif de communication de longue distance. Le piaillement est en général décrit par un facteur d'accroissement de la largeur de raie, α, donné par [212]:

$$\alpha = \frac{-4\pi}{\lambda} \frac{dN/dn}{dg/dn} \tag{4.6}$$

où g est le gain et λ la longueur d'onde. Réduire le facteur α revient à trouver des moyens pour réduire le taux de changement du gain avec la densité de porteurs (dg/dn); et c'est la raison pour laquelle on utilise des lasers où la cavité est sous contrainte d'une part [4, 213-215] et dopée p d'autre part [216].

Par ailleurs, il est reconnu que pour atteindre les largeurs de bande de modulation prédites théoriquement [5] (de 60 GHz à 90 GHz), le temps de capture des porteurs dans les PQ d'un laser doit être réduit [18, 27, 33, 34, 55]. En effet, Kan et collaborateurs ont montré que la diffusion et la capture de porteurs sont corrélées de façon intrinsèque et qu'un temps de capture aussi court que 0.2 ps limite considérablement la largeur de bande de modulation d'un laser à PQ [29]. Ils ont conclu que les performances d'un laser sont limitées par le transport d'électrons plutôt que celui des trous, car ces derniers sont capturés plus rapidement par les PQ malgré leur diffusion lente. De plus, d'autres groupes de recherche ont étudié le phénomène de saturation de gain [19] dont l'origine continue d'être un sujet de controverse. De nombreuses bonnes références traitant ce sujet sont citées dans l'introduction de cette thèse. Ce bref rappel nous a permis de constater tout simplement qu'avec les temps de capture et de transport que nous venons d'estimer, le laser ayant les performances souhaitées n'est pas encore conçu.

4.5 Conclusion

À l'aide de la photoluminescence résolue en temps, nous avons étudié la dynamique des porteurs en régime transitoire dans des structures laser à puits quantiques multiples sous contraintes.

Nous avons évalué les temps de montées et de descentes de la luminescence issue des PQ et démontré que ces temps sont grandement influencés par la température du réseau et la densité d'excitation. Des temps comparables, de transport et de capture, de ~ 3 ps environ ont été obtenus. La relaxation des porteurs est plus rapide à basse température du réseau mais la longueur du libre parcours moyen de l'électron augmente et peut dépasser la largeur du puits quantique. Dans un tel cas, l'efficacité de capture des porteurs par les puits quantiques est réduite. Aux fortes densités d'excitation, le phénomène de remplissage de bandes, les recombinaisons non radiatives Auger et l'écrantage des interactions porteur-phonon ralentissent les processus de relaxation. Le temps de décroissance de la PL augmente.

Enfin, nous avons étudié l'effet de l'énergie d'excitation sur le temps de capture des porteurs par les PQ. Nos résultats mettent en évidence l'impact de phénomènes tels que les porteurs chauds, les phonons chauds et le transfert de porteurs entre les vallées Γ et L de la bande de conduction. Sous une excitation de forte énergie, les électrons acquièrent un plus grand supplément d'énergie et leur température initiale est plus élevée. Ces effets

provoquent un aller et retour d'une portion de la population d'électrons entre les vallées Γ et L. Nous avons estimé un temps de ralentissement de la relaxation des électrons, dû à la combinaison des effets de deux processus: le caractère chaud des porteurs et leur transfert entre les vallées Γ et L. Ce temps est de l'ordre de 3 ps. À notre connaissance, un tel temps est estimé pour la première fois dans un quaternaire d'InGaAsP.

CHAPITRE 5

Interprétation des résultats obtenus par diffraction de rayons X de haute résolution

5.1 Introduction

Dans le chapitre 3, nous avons noté un comportement anomal de la PL de la structure C en fonction de la température du réseau (T_L). En effet, les spectres de PL de cette structure contenaient deux pics pour des T_L comprises entre 6 K et 100K et un seul pic pour des T_L allant de 100 K à l'ambiante. Le rapport des intensités de PL correspondant à ces deux pics s'inversait pour des T_L inférieures à ~ 75 K et la position du pic à basse énergie n'évoluait que très peu avec T_L. Ces résultats sont similaires à ceux rapportés dans la vaste littérature [127-138] où on attribuait le comportement anomal de la PL à un phénomène d'ordre structural ayant lieu au moment de la croissance des structures. Par ailleurs, sachant que la probabilité d'occurrence d'un tel phénomène augmente avec l'épaisseur de la région active, son investigation dans la structure C (la plus épaisse) devient impérative.

Nous commençons ce chapitre par un rappel succinct de la diffraction de RX et nous précisons le genre d'information qu'on peut obtenir par cette technique de caractérisation.

Ensuite, nous procédons à la caractérisation structurale des trois structures laser à PQM en estimant leurs compositions et les contraintes associées. Les résultats expérimentaux sont commentés à la lumière de ceux obtenus par des simulations. Les modèles de formation de domaines ordonnés sont nombreux, nous en présentons un et décrivons la procédure expérimentale de vérification de leur existence éventuelle. À défaut d'une mise en évidence d'un ordre structural, quelques facteurs qui s'y rattachent sont discutés et le comportement anomal de la PL de la structure C en fonction de la température de son réseau est attribué à des recombinaisons électron-accepteur. Nous terminons ce chapitre par proposer des perspectives de recherches utilisant les mêmes techniques expérimentales mais avec une nouvelle façon de faire ou faisant appel à d'autres techniques expérimentales.

5.2 Diffraction de RX et liens entre espace réel et espace réciproque

Dans ce qui suit, nous allons rappeler de façon succincte et simplifiée, l'utilité de la diffraction de RX comme technique liant un espace réel à un espace réciproque. Ce rappel a comme objectif de préciser le type d'information qu'on peut extraire d'un spectre de diffraction de RX de haute résolution (DRXHR). Cet exercice nous aidera à mieux interpréter nos résultats expérimentaux.

Considérons un supra-réseau constitué de N périodes. Chaque période est formée de deux couches de matériaux m1 et m2, d'épaisseurs z_{m1} et z_{m2} ($z_{m2} > z_{m1}$). La période du

supra-réseau est $D = z_{m1} + z_{m2}$. Les paramètres de maille de chacun de ces deux matériaux, le long de la direction de croissance $\vec{oz}$, sont a_{m1} et a_{m2}. La diffraction de RX représente la transformée de Fourier de la distribution électronique. En d'autres mots, à chaque réflexion de Bragg (ou point du réseau réciproque), correspond une composante de la transformée de Fourier de la densité électronique. la période D est représentée par une fonction f(z) (avec $f(z) = f(z_1) + f(z_2)$) qui décrit, à l'aide des facteurs de formes atomiques, les centres (atomes) périodiques de diffraction. Notons que ces facteurs de formes sont différents pour les matériaux m1 et m2. L'intensité des RX diffractés est proportionnelle à $FF^*(k)$, où F(k) est la transformée de Fourier de f(z), et où $F^*(k)$ est son complexe conjuguée. La figure 5.1 représente un spectre de diffraction de RX issu du supra-réseau défini précédemment.

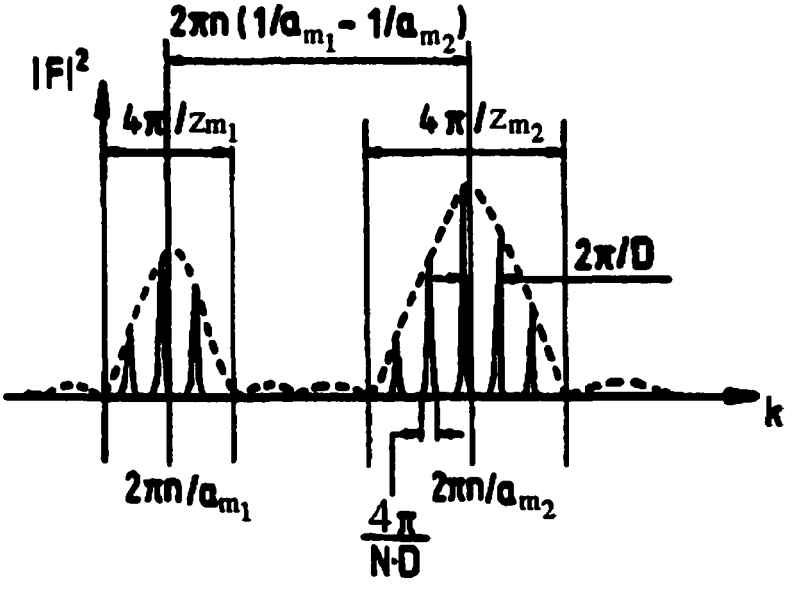


Figure 5.1: Spectre de diffraction de RX donné par un supra-réseau (supposé parfait) constitué de N périodes formées de deux matériaux m1 et

m2 ayant des facteurs de facteurs de structures différents.

Dans ce qui suit, nous allons préciser le genre d'information qu'un spectre de diffraction de RX peut fournir. D'après la figure 5.1 on voit que:

- L'intensité d'un pic de diffraction est proportionnelle au volume du matériau.
- La position d'un pic de diffraction de RX associé à une couche dépend de son paramètre de maille ($2\pi/a$).
- La largeur des fonctions enveloppes sont inversement proportionnelles aux épaisseurs des couches ($4\pi/z$).
- Plus les paramètres de mailles des couches d'une hétérostructure sont différents, plus les positions des pics de diffraction associés à chacune des couches sont distanciées.
- La largeur des pics satellites est inversement proportionnelle à l'épaisseur totale de l'hétérostructure ($4\pi/N\ D$). D peut être évaluée à partir de l'espacement (angulaire $\Delta\theta$, ou Δk) entre deux pics successifs: $D = (n_1 - n_2)\ \lambda\ /\ 2(\sin\theta_1 - \sin\theta_2)$ où n_1 et n_2 sont les ordres de diffraction des pics satellites et θ_1 et θ_2 leurs angles de Bragg [217].

Nous avons présenté un cas idéal où les paramètres de mailles des deux matériaux constituant l'hétérostructure sont très différents donnant lieu à des pics de diffraction très bien résolus. Un spectre de diffraction de RX issu d'une hétérostructure laser est plus complexe. En effet, les paramètres de mailles des matériaux qui la constituent ne diffèrent que de très peu. De plus, dans une couche partiellement relaxée, les paramètres de maille dans les directions parallèle ($a_{//}$) et orthogonale ($a_{\perp}$) à celle de la croissance

sont différents. Dans la section qui suit, nous allons montrer comment déterminer les valeurs de ces deux paramètres à partir de résultats qu'on obtient d'une combinaison de réflexions asymétriques de RX. Quant aux incertitudes associées à ces valeurs, inhérentes à la complexité des spectres, elles seront discutées dans la section intitulée résultats et analyse.

5.3 Comment déterminer $a_{//}$ et $a_{\perp}$?

Par croissance épitaxiale d'un alliage cubique ne possédant pas le même paramètre de maille qu'un substrat cubique, on peut obtenir dans les cas extrêmes soit une couche mince totalement relaxée, soit totalement sous contrainte (de compression ou de tension). Selon l'épaisseur de la couche, sa composition et la différence entre les paramètres de mailles, l'obtention de toute structure intermédiaire est possible. Les diverses possibilités sont illustrées à la figure 5.2.

La diffraction de RX utilisant des réflexions symétriques (réflexions par les plans {004}, par exemple) permet la détermination de $a_{\perp}$. Dans le cas d'une couche épitaxiale totalement sous tension, sa maille initialement cubique est distordue en maille tétragonale. Sa constante de maille $a_{//}$ est alors égale à celle du substrat ($a_{//} = a_S$). On parle alors d'une croissance pseudomorphique. Pour une croissance non pseudomorphique, les couches sont partiellement sous contraintes ($a_{//} \neq a_S$). Les diffractions symétriques ne permettent plus la détermination conjointe de $a_{\perp}$ et $a_{//}$. Une

façon de contourner la difficulté est d'effectuer des réflexions asymétriques. Dans ce qui suit, nous décrivons ce type de réflexions et dérivons quelques équations qui seront utilisées dans l'analyse des spectres expérimentaux de DRXHR que nous présenterons dans la section suivante. À la figure 5.3, nous illustrons l'usage des réflexions (115) dans les géométries positive et négative, (115^+) et (115^-). Ce cas est traité dans l'éventualité où une famille de plans {hkl} de la couche présente une inclinaison $\Delta\varphi$ par rapport à la même famille de plans dans le substrat. Les réflexions asymétriques dans la géométrie positive (115^+), produisent deux pics de diffraction: l'un est situé à $\theta_S + \varphi_S$ et il est attribué au substrat; l'autre est centré sur $\theta_C + \varphi_C$ et il correspond à la couche. Dans la géométrie (115^-), ces deux pics apparaissent respectivement à $\theta_S - \varphi_S$ et $\theta_C - \varphi_C$.

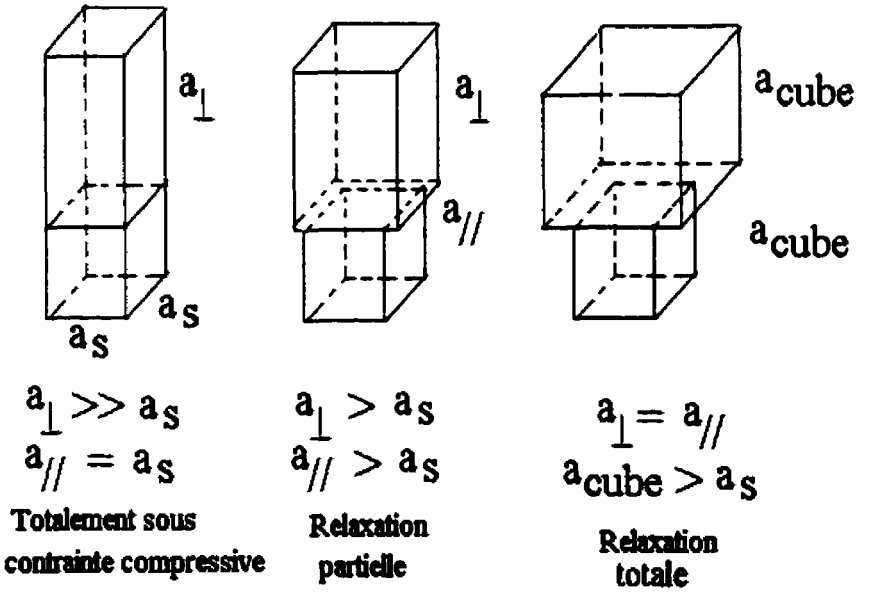


Figure 5.2: Différents états de contraintes d'une couche déposée sur un substrat.

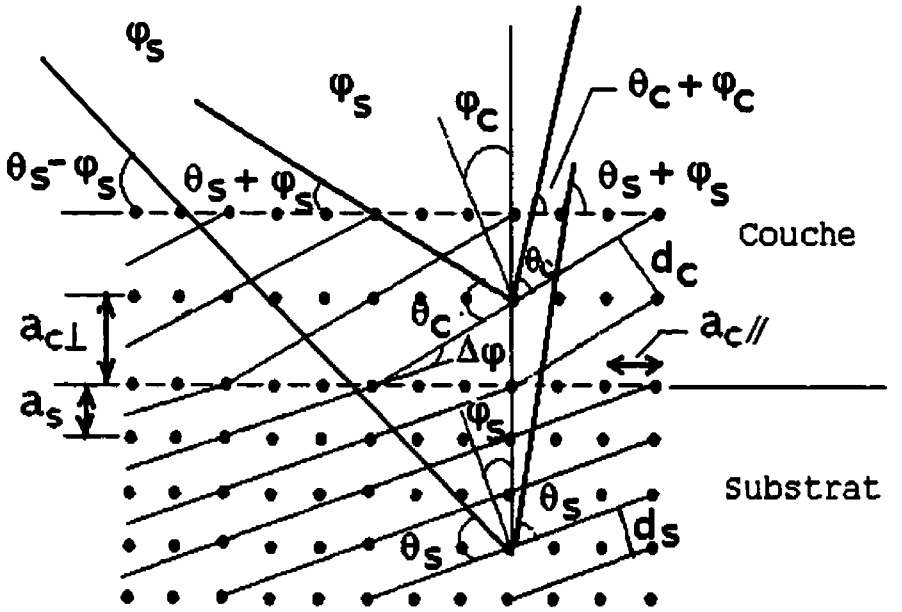


Figure 5.3: Diffraction de RX dans les géométries positive et négative.

Désignons par $\Delta\alpha$ et $\Delta\beta$ les séparations angulaires des deux pics dans les spectres de diffraction associés aux géométries (115^+) et (115^-), respectivement. Les angles θ_c et φ_c sont alors donnés par les relations suivantes [218, 219]:

$$\theta_C = \theta_S \mp \Delta\theta \qquad (5.1)$$

et

$$\varphi_C = \varphi_S \pm \Delta\varphi \qquad (5.2)$$

avec

$$\Delta\theta = \tfrac{1}{2}(\Delta\alpha + \Delta\beta) \qquad (5.3)$$

et

$$\Delta\varphi = \tfrac{1}{2}(\Delta\beta - \Delta\alpha) \qquad (5.4)$$

Dans les équations 5.1 et 5.2, on utilise les séquences de signes (+,-) ou (-,+) selon que la valeur de l'angle de diffraction (angle de Bragg) associé à la couche est plus élevée ou plus petite que celle associé au substrat, respectivement. Par ailleurs, pour une famille de plans {hkl} d'une couche déposée dans la direction [XYZ], les angles (en degré) θ_S et φ_S sont donnés par:

$$\varphi_S = 57.29577951 \times Arc\cos\left[\left(\frac{h\times X + k\times Y + l\times Z}{\sqrt{\left(h^2+k^2+l^2\right)\times\left(X^2+Y^2+Z^2\right)}}\right)\right] \quad (5.5)$$

$$\theta_S = 57.29577951 \times Arc\sin\left(\frac{\lambda}{2d_{hkl}}\right) \quad (5.6)$$

où λ est la longueur d'onde des RX et d_{hkl} est la distance réticulaire. Le tableau 5.1 résume certaines valeurs de θ_S et φ_S ainsi que les angles de Bragg ω^+ et ω^- associés aux diffractions par les plans {004}, {115$^+$}, et {115$^-$} dans de l'InP. Remarquons que la mesure de la diffraction de RX par certains plans {hkl} est techniquement impossible car elle exigerait que le détecteur soit placé en arrière de l'échantillon! De plus, si le pic de diffraction de RX associé au substrat n'apparaissait pas aux angles ω^+ et ω^- du tableau 5.1, on aurait la preuve d'inclinaison de la surface du substrat par rapport au plan {001}. Les paramètres de maille $a_{//}$ et $a_\perp$ seront déterminés à partir des relations [102, 218, 220]:

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_\perp = \frac{a_\perp - a_S}{a_S} = \Delta\varphi\tan(\varphi_S) - \Delta\theta\cot(\theta_S) \quad (5.7)$$

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{//} = \frac{a_{//} - a_S}{a_S} = -\Delta\varphi\cot(\varphi_S) - \Delta\theta\cot(\theta_S) \quad (5.8)$$

où a_S est le paramètre de maille du substrat et où $\Delta\varphi$ et $\Delta\theta$ (dépendent de $\Delta\alpha$ et $\Delta\beta$, équations 5.3 et 5.4) seront évalués à partir des spectres expérimentaux. Nous avons décrit comment déterminer $a_{//}$ et $a_{\perp}$ à partir d'une combinaison de réflexions de RX asymétriques. Nous passons maintenant à la présentation et à l'analyse des résultats expérimentaux.

Tableau 5.1: Valeurs de d_{hkl}, θ_S, φ_S, ω+ et ω- pour certains plans {hkl} dans de l'InP (a_S = 5.8688 Å). La direction de croissance de la couche est [001]. $d_{hkl} = a_S / (h^2 + k^2 + l^2)^{1/2} = n \lambda / 2 \sin\theta_S$ où n est un entier naturel et λ = 1.5406 Å.

Plan {hkl}			d_{hkl} (Å)	φ_S (°)	θ_S (°)	$\omega^+ = \theta_S + \varphi_S$ (°)	$\omega^- = \theta_S - \varphi_S$ (°)
0	0	4	1.467	0	31.668	31.668	31.668
1	1	5	1.129	15.793	42.999	58.792	27.206

5.4 Résultats et analyse

Aux figures 5.4, 5.5 et 5.6, nous présentons les spectres expérimentaux et simulés des diffractions par les plans {004}, {115$^+$} et {115$^-$} dans les structures A, B et C. Les résultats des simulations seront discutés dans la section suivante. Tel qu'illustré à la figure 5.4, un spectre de diffraction de RX d'une structure à PQM (ou supra-réseau) contient les éléments suivants [218]: a) un pic intense et étroit qu'on associe au substrat; b) un premier pic (à gauche du substrat) attribué au motif périodique (PQ + Bar) et qu'on

convient d'appeler pic de diffraction d'ordre zéro; c) des pics "satellites" correspondant à des diffractions d'ordres supérieurs (-1, -2, etc à gauche du pic d'ordre zéro et 1, 2, etc à droite du pic associé au substrat), et d) de petits pics (ou des oscillations, communément appelées franges) situés entre les pics satellites dont les séparations angulaires reflètent l'épaisseur totale de l'ensemble des PQ et des barrières. Ces franges proviennent d'interférences entre les ondes diffractées aux interfaces supérieure et inférieure de l'hétérostructure. La physique classique de la diffraction montre que pour un supra-réseau formé de N hétérostructures, il y a (N-2) franges entre deux pics satellites adjacents

Ultérieurement, nous avons dit que le spectre de diffraction d'une hétérostructure laser est assez complexe. En effet, les matériaux d'une telle hétérostructure (PQ + Bar.) ont généralement des paramètres de mailles très peu différents. Il en résulte que les pics de diffraction de RX (quel que soit l'ordre de diffraction) associés à ces deux matériaux sont confondus. La position angulaire d'un pic de diffraction correspond à un paramètre de maille qui est la moyenne des paramètres de mailles des deux matériaux: $a_H = (z_{PQ}a_{PQ} + z_{Bar}a_{Bar})/(z_{PQ}+z_{Bar})$. Par ailleurs, les diverses couches peuvent diffracter de façon cohérente et les amplitudes des ondes diffractées s'additionnent et interfèrent produisant un spectre compliqué. Dans certains cas, cela produit de "faux" pics [220, 221] ou des déplacements des positions des pics associés aux couches [222] rendant ainsi la détermination du paramètre de maille très imprécise, sinon impossible.

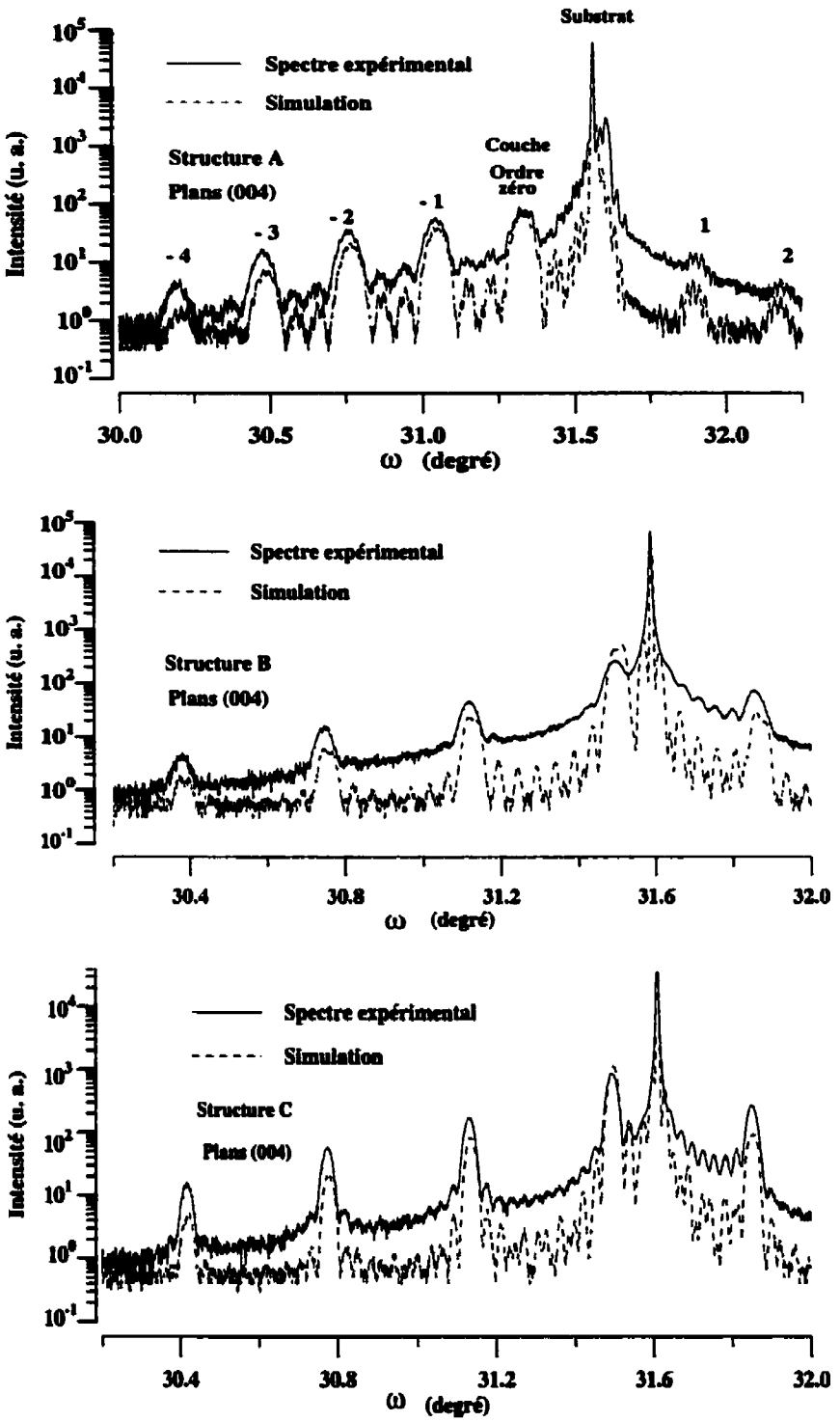


Figure 5.4: Spectres de DRXHR par les plans {004}dans les structures A, B et C.

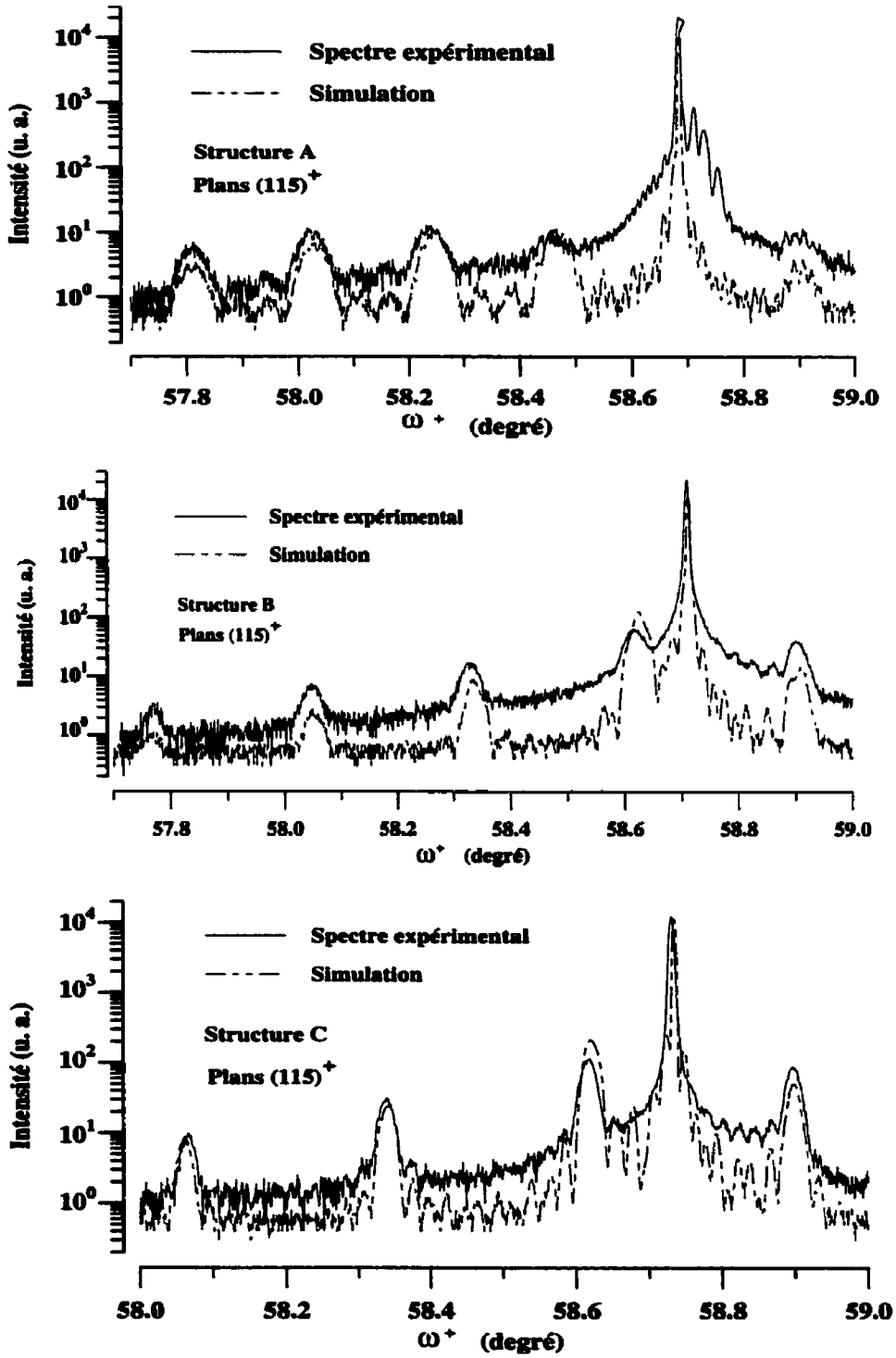


Figure 5.5: Spectres de DRXHR par les plans $\{115\}^+$ dans les structures A, B et C.

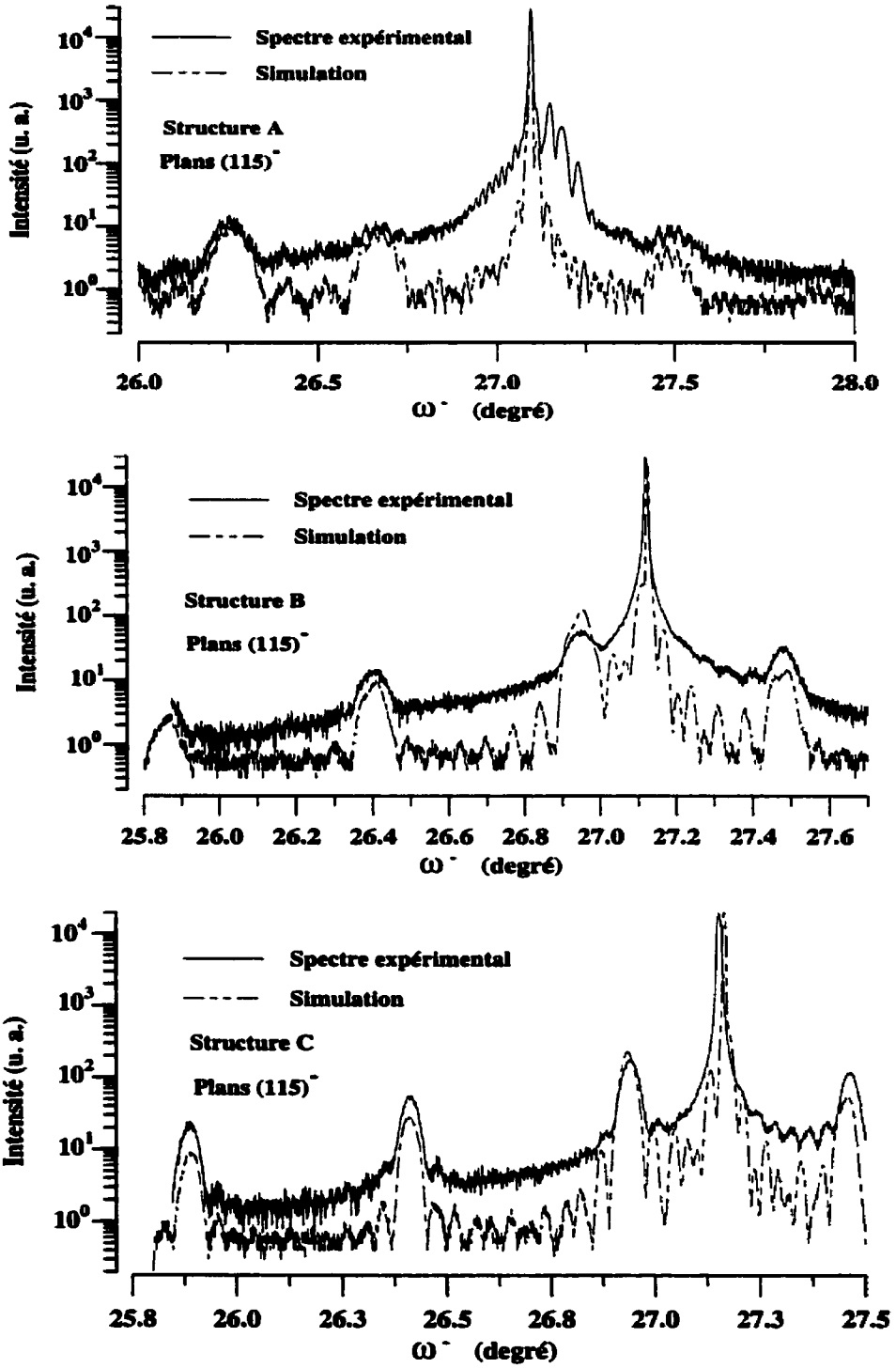


Figure 5.6: Spectres de DRXHR par les plans $\{115\}^-$ dans les structures A, B et C.

Afin d'évaluer la contribution des régions de confinement à la diffraction de RX, nous avons simulé les spectres expérimentaux en omettant ces régions. À la figure 5.7, nous présentons le résultat de la simulation superposé au spectre expérimental obtenu pour les réflexions (004) dans la structure A. Omis la disparition des petites oscillations modulant les pics associés à l'hétérostructure et un petit déplacement (quelques centièmes d'arcsecondes) des pics satellites, l'exclusion de la région de confinement n'altère pas significativement *l'allure* des spectres.

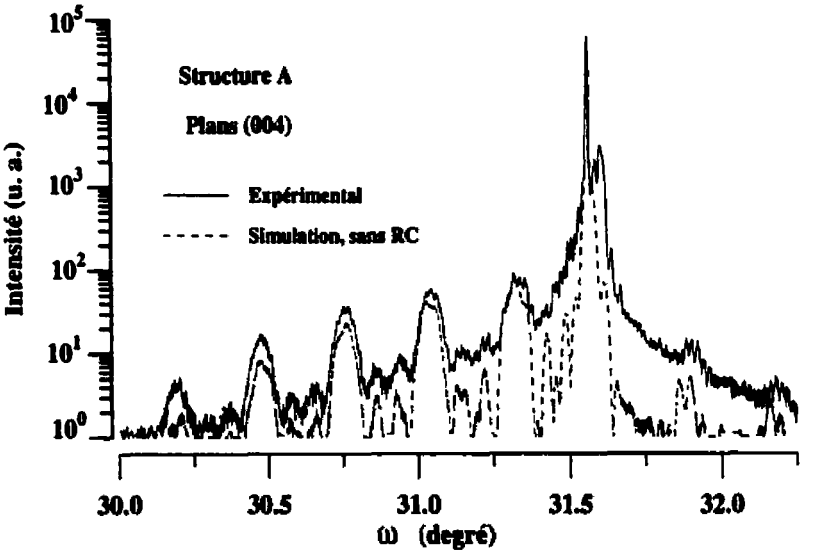


Figure 5.7: Comparaison du spectre expérimental de la structure A à celui obtenu par simulation lorsque la région de confinement est omise.

Dans la section prochaine, nous allons interpréter nos résultats en termes d'intensité et de largeur à mi-hauteur des pics de diffraction de RX. Les effets de déplacement éventuel des pics satellites causés par les régions actives ou les couches couvercles seront discutés dans la section 5.4.2.

5.4.1 Largeur à mi-hauteur et intensité des pics de diffraction

La largeur à mi-hauteur (FWHM) d'un pic de diffraction dépend des variations de la contrainte, de l'épaisseur du matériau et de ses qualités structurales. Pour une couche mince, le FWHM est donné par [102]:

$$FWHM = \frac{\lambda \ \gamma_s}{z \sin 2\theta} \tag{5.9}$$

où λ est la longueur d'onde des RX (1.5406 Å), θ est l'angle de Bragg, z est l'épaisseur de la couche et γ_s est le cosinus directeur du faisceau diffracté par rapport à la normale au plan de diffraction. Dans le tableau 5.2, nous résumons les valeurs des FWHM pour les pics satellites de diffraction d'ordre (-1) mesurées pour tous les spectres expérimentaux.

Tableau 5.2: FWHM des pics satellites d'ordre (–1) évalué pour les diffractions {004}, {115$^+$} et {115$^-$} pour les structures A, B et C.

FWHM (en degré) des pics satellites d'ordre (-1)	Structure	Plan		
		{004}	{115$^+$}	{115$^-$}
	A	0.075	0.062	0.112
	B	0.049	0.039	0.079
	C	0.038	0.03	0.053

Nous n'avons pas considéré les pics de diffraction d'ordre zéro pour évaluer le FWHM, car les profiles de ces pics ne sont pas symétriques. Les côtés droits de ces pics sont fort probablement affectés par la diffraction issue des régions de confinement. Ces régions, supposées en accord de maille parfait avec le substrat, contiennent des contraintes

résiduelles telles que suggérées par les simulations que nous discuterons un peu plus loin dans ce chapitre.

À ce niveau, il faut bien noter que contrairement au cas d'une structure simple (couche unique), la largueur à mi-hauteur d'un pic de diffraction issue d'un supra-réseau dépend de son épaisseur totale (la somme des périodes). À notre connaissance, aucune relation explicite entre l'épaisseur totale d'un supra-réseau et la largeur à mi-hauteur de son pic de diffraction n'a été établie. Toutefois, on sait que plus l'épaisseur totale d'un supar-réseau est grande, plus la largeur à mi-hauteur de son pic de diffraction est faible. Comparativement aux autres structures, le FWHM des pics satellites de la structure A est le plus élevé, pourtant cette structure possède la région active la moins épaisse (1120 Å). Ce résultat suggère que la qualité structurale de A est moins bonne que celle de B et C; ce qui n'est pas le cas. En effet, nos mesures de PLRT (chapitre 4) ont montré que le temps de vie des porteur dans la structure A est similaire à ceux obtenus dans B et C, sinon une centaine de ps plus élevé. Nous attribuons ce résultat à un désaccord de maille (contrainte interfaciale), plus élevé, entre les couches des PQ et celles des barrières. Les longueurs des liaisons atomiques diffèrent de part et d'autre des interfaces car les couches n'ont pas les mêmes compositions en éléments III-V. En ce qui concerne B et C, nous savons que l'épaisseur totale du supra-réseau de B est plus petite que celle de celui C (1380 Å et 1920 Å, respectivement). Il n'est donc pas surprenant de constater que le FWHM des pics de diffraction de la structure C soit plus faible que ce que nous notons pour B. Toute corrélation entre les qualités structurales des couches dans les deux

structures et le FWHM est "noyée" dans la différence énorme de leurs épaisseurs. Dans ce qui suit, nous examinerons d'autres caractéristiques.

En général, l'angle de Bragg pour une hétérostructure périodique à PQM dont la période n'excède pas 500 Å, correspond à une structure dont la composition est une moyenne des compositions des alliages qui la constituent [101]. Les intensités des pics de diffraction associés au substrat et à l'hétérostructure dépendent des volumes des matériaux et de leur nature. Sachant que les épaisseurs totales des régions actives sont de 1120 Å, 1380 Å et 1920 Å pour A, B et C, respectivement; on constate que la notion de volume du matériau diffractant, à elle seule, n'explique pas les résultats obtenus. En effet, l'intensité de RX diffractés par la structures B est plus faible que celle de A, quel que soit l'ordre de diffraction considéré. De plus, comparativement à la structure C, on note un élargissement progressif des pics satellites de diffraction d'ordres supérieurs pour les structures A et B. De plus, cet élargissement est plus prononcé pour la structure B. Quant aux franges, elles ne sont presque pas visibles dans les spectres de la structure B. Les qualités structurale et d'interface dans la structure B sont à l'origine de ce comportement. Examinons les résultats de plus près.

Il a été démontré qu'une rugosité d'interface ou des fluctuations aussi bien latérales que transversales (dans la direction de croissance) des épaisseurs des PQ et des barrières entraînent un élargissement progressif des pics satellites de diffraction d'ordres supérieurs [223] et un affaiblissement de l'intensité des franges (petites oscillations entre

les pics satellites) [224]. Selon Powell et collaborateurs [224], une légère variation de la période (de l'ordre de 2%) affaiblit de façon drastique les intensités des franges. Par ailleurs, d'autres chercheurs [225-228] ont rapporté qu'une diffusion d'atomes d'une couche à l'autre n'affecte que très peu les intensités des pics de diffraction d'ordres inférieurs, mais affaiblit les intensités des pics de diffraction d'ordres supérieurs et cause une asymétrie dans l'intensité des franges situées autour du pic de diffraction associé à l'hétérostructure. Selon ces chercheurs [225-228], une diffusion d'atomes d'une couche à l'autre introduit un gradient de composition (ou de contrainte) qui provoque un déphasage entre les ondes diffractées aux interfaces affectant ainsi les intensités des franges. L'ensemble des arguments que venons de citer corrobore nos résultats de photoluminescence standard. En effet, nous avons noté que les positions des pics principaux de PL se déplaçaient vers les hautes énergies à mesure que la densité d'excitation augmentait (section 3.2.1 du chapitre 3). Nous avons attribué ces déplacements, en partie, à des variations des épaisseurs des PQ et des barrières. De plus, rappelons que pour la structure B, nous avons observé dans ses spectres de PL standard un pic situé à ~ 1.32 eV. Nous avons attribué ce pic à du zinc utilisé comme dopant du type p de la couche d'InP. Nous n'avons pas vu ce pic dans la PL de la structure A, car la couche d'InP n'y est pas dopée. Sachant que le zinc peut diffuser à une profondeur de 1 μm, [177], il est fort probable qu'il ait diffusé, le moindrement, vers la région active dans la structure B éliminant ainsi les franges dans ses spectres de diffraction de RX. Dans ce qui suit , nous continuerons l'analyse des résultats en examinant d'autres données telles que les séparations angulaires des pics satellites.

5.4.2 Séparation angulaire entre le pic de diffraction d'ordre zéro de l'hétérostructure et celui du substrat

La séparation angulaire entre le pic de diffraction d'ordre zéro associé à l'hétérostructure et celui du substrat reflète la différence entre leurs paramètres de mailles. Plus le désaccord de maille est élevé, plus les angles de Bragg correspondants sont différents et l'espacement angulaire ($\Delta\theta$) des pics est élevé. Quant à l'espacement angulaire entre les pics satellites, il est inversement proportionnel à l'épaisseur du motif périodiquement répété. À partir des spectres expérimentaux de diffraction de RX, nous avons évalué ces séparations angulaires. Nous consignons les valeurs obtenues dans le tableau 5.3. Désignons par $S_{S\text{-}C}$, la séparation angulaire entre la position du pic du substrat et celle du pic de diffraction d'ordre zéro de l'hétérostructure. Désignons par $\frac{\Delta a}{a} = \frac{a_C - a_S}{a_S}$, le désaccord de mailles relatif, entre l'hétérostructure et le substrat. Il importe de rappeler que a_C ne représente pas le paramètre de maille des PQ ou celui des barrières, mais plutôt, une moyenne des deux. a_C est donné par: $a_C = (z_{PQ}a_{PQ} + z_{Bar}a_{Bar})/(z_{PQ}+z_{Bar})$ où z_{PQ} et z_{Bar} sont les épaisseurs des PQ et des barrières et a_{PQ} et a_{Bar} sont leurs paramètres de mailles. D'après le tableau 5.4, on voit que $S_{S\text{-}C}(B) < S_{S\text{-}C}(C) < S_{S\text{-}C}(A)$ quel que soit le plan de diffraction considéré. Cela implique qu'en termes de désaccords de mailles, on doit avoir: $\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_A > \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_C > \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_B$. Or, les contraintes compressives visées au moment de la croissance des hétérostructures étaient de 1.5% pour la structure A et de 1% pour B et C. Ce résultat est donc prévisible pour la structure A. Quant à la structure C, ce résultat

demande une certaine réflexion. Toutefois, la structure C est plus épaisse que B, et on s'attend à ce que les phénomènes de relaxation y soient plus importants. Nous reviendrons à ce sujet un peu plus loin.

Tableau 5.3: Valeurs des séparations angulaires entre les pics de diffraction d'ordre zéro associés aux hétérostructures A, B et C et celui du substrat. Espacements angulaires entre les pics satellites et FWHM évalués pour toutes les diffractions ({004}, {115$^+$} et {115$^-$}).

Pics concernés	Séparation angulaire (en degré) selon le plan réticulaire de diffraction considéré								
	{004}			{115$^+$}			{115$^-$}		
	A	B	C	A	B	C	A	B	C
Substrat-Ordre zéro	0.219	0.095	0.114	0.228	0.094	0.111	0.437	0.172	0.211
Ordre zéro-Ordre (-1)	0.288	0.373	0.362	0.216	0.285	0.278	0.405	0.545	0.533
Ordre (-1)-Ordre (-2)	0.286	0.371	0.356	0.217	0.283	0.275	0.404		0.528
Ordre (-2)-Ordre (-3)	0.285	0.367	0.359	0.211	0.277	0.273			
Ordre (-3)-Ordre (-4)	0.287								
Moyenne des séparations angulaires entre les pics satellites	0.286	0.370	0.359	0.214	0.281	0.275	0.404	0.545	0.530

Les équations 5.7 et 5.8 permettent de déterminer $a_{//}$ et $a_{\perp}$. Cependant, ces équations ont été établies dans l'approximation où $\Delta\theta$ et $\Delta\varphi$ sont petits. Elles conduisent à de grandes erreurs dans l'évaluation de $a_{//}$ et $a_{\perp}$ lorsque les contraintes sont élevées. Nous avons préféré utiliser une autre alternative consistant à déterminer le rapport $\frac{a_{\perp}}{a_{//}}$ à partir de

l'angle φ_C correspondant aux plans {hkl}d'une maille tétragonale (équation 5.5). Ces deux entités sont reliées par:

$$\frac{a_{\perp}}{a_{//}} = \sqrt{\frac{l^2}{h^2+k^2}}\ tg(\varphi_C) \tag{5.10}$$

Ensuite, nous avons utilisé le rapport $\frac{a_{\perp}}{a_{//}}$ conjointement avec l'angle θ_C pour déterminer $a_{//}$ et $a_{\perp}$. L'expression qui les relie n'est rien d'autre que la formule de Bragg:

$$\frac{2\sin(\theta_C)}{\lambda} = \sqrt{\frac{h^2+k^2}{a_{//}^2} + \frac{l^2}{a_{\perp}^2}} \tag{5.11}$$

Quant au paramètre de maille d'une couche relaxée, (a_{Cube}), nous l'avons évalué en nous servant des mesures expérimentales et de la relation [102]:

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{Cube} = \frac{a_{Cube}-a_S}{a_S} = 0.470\left\{\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\perp} - \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{//}\right\} + \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{//} \tag{5.12}$$

Enfin, nous avons calculé la contrainte et le taux de relaxation de chacune des hétérostructures A, B et C. Ce taux est donné par [219, 220]:

$$R\% = \frac{a_{//}-a_S}{a_{Cube}-a_S}\times 100 \tag{5.13}$$

Les valeurs obtenues, de l'ensemble de paramètres, sont consignées dans le tableau 5.5. Les erreurs maximales, sur chacun des paramètres, sont évaluées en admettant commettre une erreur de 0.005 degré au cours de l'évaluation des séparations des pics. En examinant les valeurs des divers paramètres, on remarque que tout en gardant des mailles tétragonales, toutes les structures ont relaxé. Les paramètres de maille de la structure C ($a_{//}$ et a_{Cube}) sont légèrement plus élevés que ceux de B. À ce niveau, nous retrouvons le

résultat de la section précédente, à savoir: $\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_C > \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_B$. Cependant, les taux de relaxation que nous avons calculés sont sensiblement les mêmes pour les trois structures. Ce résultat implique que les structures B et C, supposées ne différer que par le nombre de PQ (8 PQ dans B et 16 PQ dans C), ont des régions actives de compositions chimiques légèrement différentes. Ce résultat est en parfait accord avec ceux de la PL en régime continu qui montrent que les pics des PL issues des PQ des structures B et C présentent un décalage de ~ 5 à 10 meV les uns par rapport aux autres pour les mêmes conditions de densité d'excitation et de température de réseau.

Tableau 5.4: Paramètres de mailles $a_{//}$, $a_{\perp}$ et a_{Cube} et des taux de relaxation (R%) des hétérostructures périodiques A, B et C. La contrainte compressive = $(a_S - c_{ube}) \times 100 / a_S$.

Structure	Plans {115}, a_S = 5.8688 Å					
	d_{115} ± 0.0002 (Å)	$a_{//}$ ± 0.003 (Å)	$a_{\perp}$ ± 0.007 (Å)	a_{Cube} ± 0.005 (Å)	Contrainte compressive %?	R%
A	1.1365	5.943	5.985	5.963	- 1.63	~ 79
B	1.1322	5.897	5.912	5.905	- 0.62	~ 80
C	1.1328	5.904	5.924	5.914	- 0.79	~ 79

De plus, à partir des spectres expérimentaux de DRXHR, nous avons estimé les épaisseurs des couches périodiques (PQ et barrière) qui forment les régions actives de chacune des trois structures. En effet, connaissant la séparation angulaire ($\Delta\omega$) entre

deux pics satellites successifs (interférences d'ordre 0, -1, -2, etc), la période D est donnée par [102, 229]:

$$D = \frac{\lambda \ \sin(\theta_C \pm \varphi_C)}{\Delta\omega \ \sin(2\theta_C)} \qquad (5.14)$$

où θ_C et φ_C représentent l'angle de Bragg et l'angle entre la surface de la couche et la normale au plan de réflexion {hkl}, respectivement. Cette équation est valide pour toutes les réflexions de RX possibles. Elle se simplifie pour la réflexion {004} pour laquelle $\varphi_C = 0$. $(\theta_C \pm \varphi_C)$ représentent les angles que font les RX diffractés avec la surface de la structure pour les réflexions dans les géométries$\{115^{\mp}\}$, respectivement. Nous nous sommes servis des séparations angulaires consignées dans le tableau 5.3 pour évaluer les épaisseurs des motifs périodiques. Les résultats sont données dans le tableau 5.6.

Tableau 5.5: Périodes des hétérostructures dans A, B et C. Le paramètre de maille du substrat est $a_S = 5.8688$ Å.

Structure	Période des hétérostructures en (Å)				Épaisseur moyenne (Å)
	Optimale de croissance	Calculée (à ± 2 ou 3 Å) à partir de l'équation 5.14 appliquée aux plans:			
		{004}	$\{115^{+}\}$	$\{115^{-}\}$	
A	155	180	175	187	180.50
B	135	140	146	139	141.75
C	135	144	149	143	145.50

En général, l'épaisseur d'une paire (PQ + barrière) est plus faible que la moyenne de la période du supra-réseau ainsi évaluée [223, 230, 231]. Les périodes que nous venons de déterminer sont plus élevées que celles optimales de croissance. Ce résultat s'explique par le fait que les barrières externes des couches actives sont de 300 Å pour A et de 200 Å pour B et C. L'épaisseur des barrières internes est de 100 Å.

Par ailleurs, Fewster et Curling [222] ont montré que dans certains cas, l'évaluation des paramètres de mailles telle que nous venons de le faire, n'est pas tellement rigoureuse. En effet, pour des structures simples (une seule couche, $Al_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs$), ils ont noté un déplacement (shift) du pic de la couche vers celui du substrat dès que l'épaisseur de la couche est réduite à des valeurs plus faibles que ~ 0.5 μm. Cela conduit à une sous estimation du désaccord de mailles et de la composition. Fewster et Curling [222] ont expliqué ce phénomène par le fait que lorsque la couche est de plus en plus mince, sa croissance se fait de façon "cohérente" avec le substrat; c'est-à-dire, avec une meilleure adaptation permettant de minimiser la densité de dislocations. Par ailleurs, ils ont montré que l'évaluation du désaccord de mailles entre une couche d'$In_{0.524}Ga_{0.476}As$ de 0.2 μm d'épaisseur et un substrat d'InP, contient une erreur (sous estimation) de 10% si cette évaluation est basée sur la séparation angulaire entre le pic de diffraction du substrat et celui de la couche. Part contre, pour une hétérostructure ayant une couche couvercle ($Al_xGa_{1-x}As$, $x = 0.67$ / $Al_xGa_{1-x}As$, $x = 0.5$ / $Al_xGa_{1-x}As$, $x = 0.67$ / GaAs), ils ont montré que le pic de diffraction associé à la couche prise en sandwich ($x = 0.5$) s'écarte de celui du substrat à mesure que l'épaisseur de cette couche est réduite. Le déplacement du pic

associé à la couche d' $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ se manifeste dès que son épaisseur est réduite à des valeurs plus faibles que ~ 2 μm. La plus petite épaisseur limite est imposée par la résolution de l'équipement de diffraction et dépend de l'épaisseur de la couche couvercle (x = 0.67). Dans un tel cas, se servir des séparations angulaires entre le pic de l'hétrostructure et celui du substrat conduirait à une surestimation du désaccord de mailles (des compositions). Or, les régions actives de chacune des structures sont entourées de régions de confinement plus épaisses que l'épaisseur globale d'un PQ et d'une barrière. Conformément aux arguments de Fewster et Curling [222], les paramètres de mailles (ou les compositions) que nous venons d'évaluer sont légèrement surestimés. Quant à l'évaluation de la période des supra-réseaux, elle n'est affectée par de tels phénomènes physiques puisqu'on ne considère que les séparations angulaires entre les pics satellites. D'ailleurs, comme nous allons le voir, à l'aide des simulations nous obtenons pratiquement les mêmes valeurs des périodes que celles déterminées ci-haut. Pour éviter la surestimation des compositions, nous avons simuler les spectres expérimentaux. Dans la section qui suit, nous discuterons les résultats obtenus.

5.5 Résultats des simulations des spectres de DRXHR

Tous les spectres expérimentaux associés aux réflexions (004) indiquent que les pics de diffraction associés au substrat ne sont pas exactement à l'angle de Bragg θ = 31.668 degré correspondant à un substrat parfaitement orienté dans la direction [001] (tableau 5.1). Nous en déduisons qu'au moment de la croissance des hétérostructures, les

substrats n'étaient pas parfaitement orientés dans la direction [001]. Les valeurs des angles que font les normales aux substrats avec la direction [001], utilisées dans les simulations des spectres expérimentaux des structures A, B et C, sont consignées dans le tableau 5.7.

Tableau 5.6: Inclinaison angulaire de la normale à la surface du substrat par rapport à la direction [001] dans A, B et C.

Inclinaison de la normale à la surface du substrat par rapport à la direction [001]	A	B	C
	0.105	0.075	0.053

Les valeurs des compositions (x,y) des diverses couches qui ont donné les meilleures simulations sont consignées dans les tableaux 5.8, 5.9 et 5.10 pour les structures A, B et C, respectivement. Les profiles obtenus sont superposés aux spectres expérimentaux et montrés aux figures 5.4, 5.5 et 5.6. Quant aux paramètres de mailles des diverses couches, nous les avons évalués à partir de la relation [232]:

$$a_C = 0.013\,xy - 0.4184\,x + 0.1894\,y + a_S \qquad (5.15)$$

où a_S désigne le paramètre de maille du substrat de l'InP (a_S = 5.8688 Å).

Nous remarquons qu'il y a un très bon accord entre les valeurs des périodes déterminées à partir des moyennes des séparations angulaires entre les pics satellites (tableau 5.6) et celles déterminées par simulations (tableaux 5.8, 5.9 et 5.10). Par contre, il y a un écart important entre les valeurs des paramètres de mailles (des contraintes) selon qu'elles sont déterminées par une méthode ou par l'autre. Contrairement aux résultats expérimentaux, les simulations montrent qu'aucune structure n'a relaxé de ~80%. Nous attribuons ces

écarts aux mêmes effets, démontrés par Fewster et Carling [222] et que nous avons décrits dans la section précédente. L'épaisseur de chacune des trois hétérostructues (PQ + Bar) est beaucoup plus faible que 2 µm, épaisseur seuil d'éloignement des pics de diffraction de l'hétérostructure de celui du substrat. Il en résulte que les paramètres de mailles et les relaxations que nous avons déterminés à partir des séparations angulaires entre les pics des hétérostructures et ceux du substrat sont surestimées De plus, l'existence d'une couche assez épaisse (1000 Å) d'InGaAsP dans la région de confinement de la structure A explique le fait que la surestimation des paramètres de mailles est plus élevée pour cette structure. Par ailleurs, même si la structure C est plus épaisse que B, nous avons démontré par l'une et l'autre des deux méthodes que C n'a pas relaxé plus que B. De plus, la présence de franges dans les spectres expérimentaux des trois structures nous permet de dire que les relaxations, le cas échéant, sont non significatives.

De tels résultats éliminent l'une des trois hypothèses avancées à la section 3.2.2 du chapitre 3, à savoir que le déplacement du pic de PL de la structure C en fonction de la température soit dû à une relaxation du réseau, phénomène assez fréquent, surtout lorsque l'épaisseur d'une structure dépasse une certaine valeur critique (entre 160 et 360 Å) [233]. Il nous reste à déterminer si ce comportement est dû à des paires donneur-accepteur ou à une éventuelle formation de domaines ordonnés dans la structure C au moment de la croissance épitaxiale. Dans ce qui suit, nous nous proposons de décrire le mécanisme de formation de domaines ordonnés et nous procédons à son investigation.

Tableau 5.7: Valeurs des compositions (x,y), des contraintes, des paramètres de mailles et des épaisseurs des diverses couches de la structure A (4 PQ émettant à 1.55 μm à la température ambiante). RC = région de confinement et Bar = barrière.

Couche	Épaisseur (Å)	x	y	Paramètre de maille (Å)	Contrainte (%)
InP	700	0	0	5.8688	0
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$	1000	0.169	0.370	5.8690	- 0.0031
	300	0.202	0.439	5.8686	0.0037
Barrière externe	300	0.232	0.505	5.8689	- 0.0017
Région active (4PQ + 3 Bar.)	PQ 60 ± 2	0.170	0.710	5.9337	- 1.1061
	Bar. interne 122 ± 3	0.232	0.505	5.8689	- 0.0017
Barrière externe	300	0.232	0.505	5.8689	- 0.0017
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ (dopée n)	300	0.202	0.439	5.8686	0.0037
	300	0.169	0.370	5.8690	- 0.0031
	300	0.101	0.221	5.8687	0.0019
Couche tampon d'InP	1500	0	0	5.8688	0

Tableau 5.8: Valeurs des compositions (x,y), des épaisseurs, des paramètres de mailles et des contraintes des diverses couches de la structure B (8 PQ émettant à 1.33 μm à la température ambiante). RC = Région de confinement, Bar = Barrière.

Couche	Épaisseur (Å)	x	y	Paramètre de maille (Å)	Contrainte (%)
InP (dopé p)	700	0	0	5.8688	0
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$	200	0.091	0.199	5.8687	0.0025
Barrière externe	200	0.140	0.306	5.8687	0.0011
Région active (8 PQ + 7 Bar)	PQ	0.0038 ± 2	0.195	0.590	5.9005	0.5394
	Barrière interne	0.0103 ± 2	0.140	0.306	5.8687	0.0011
Barrière externe	200	0.140	0.306	5.8687	0.0011
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ (dopée n)	200	0.091	0.199	5.8687	0.0025
Couche tampon d'InP	1500	0	0	5.8688	0

Tableau 5.9: Valeurs des compositions (x,y), des épaisseurs, des paramètres de mailles et des contraintes des diverses couches de la structure C (12 PQ émettant à 1.33 μm à la température ambiante). RC = Région de confinement, Bar = Barrière.

Couche	Épaisseur (Å)		x	y	Paramètre de maille (Å)	Contrainte (%)
InP (dopé p)	700		0	0	5.8688	0
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$	200		0.091	0.199	5.8687	0.0025
Barrière externe	200		0.140	0.306	5.8687	0.0011
Région active (12 PQ + 11 Bar)	PQ	40 ± 2	0.185	0.590	5.9046	0.6093
	Bar. interne	105 ± 2	0.140	0.306	5.8687	0.0011
Barrière externe	200		0.140	0.306	5.8687	0.0011
RC d'$In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ (dopée n)	200		0.091	0.199	5.8687	0.0025
Couche tampon d'InP	1500		0	0	5.8688	0

5.6 Pourquoi penser à l'existence éventuelle de domaines ordonnés dans la structures C?

Dans les sections précédentes, nous avons établi à partir des spectres expérimentaux et des simulations que malgré sa plus grande épaisseur, la structure C n'a pas relaxé plus que B. De plus, comparés à ceux de la structure B, les spectres de la structure C révèlent une meilleure qualité structurale. En effet, la forme symétrique des pics satellites et la constance de leur largeur à mi-hauteur (FWHM) en fonction des ordres de diffraction indiquent que C possède une structure périodique mieux définie [100, 234]. Le pic à basse énergie (P1), ayant apparu dans la PL de la structure C à basse température (section 3.2.2 du chapitre 3), n'est donc pas dû à des recombinaisons de porteurs au niveau de défauts structuraux induits par la relaxation de son réseau. À quoi peut-on attribuer ce pic? Deux hypothèses sont possibles: (1) le pic P1 représente des recombinaisons du type donneur-accepteur; (2) le pic P1 doit son origine à l'existence de domaines ordonnés dans la structure C résultants d'une occupation préférentielle des sites par les atomes qui constituent son réseau cristallin. Commençons par la deuxième possibilité puisque nous procédons à sa vérification immédiatement après l'avoir discutée.

Selon la théorie, l'existence de domaines ordonnés réduit le gap et lève partiellement la dégénérescence de la bande de valence en divisant en deux les états initialement triplement dégénérés [140, 235-237]. En effet, Wei et Zunger [140] ont démontré que les interactions entre le champ cristallin dans des matériaux ordonnés et le couplage spin-

orbite repoussent vers le haut le sommet de la bande de valence diminuant ainsi la bande interdite. Par ailleurs, il est raisonnable de penser que la présence de domaines ordonnés, à courte échelle, crée des fluctuations de potentiel induisant une distribution spatial de minimums de bandes (des minimums différents). Aux basses températures et sous de faibles densités d'excitation, les recombinaisons radiatives dans les PQ se font entre le niveau de conduction le plus bas et le niveau de valence le plus haut. De telles recombinaisons pourraient expliquer l'origine du pic P1. À mesure que l'on augmente la température du réseau ou la densité d'excitation, on sature les états de faibles énergies (remplissage de bandes) et la PL se déplace vers de hautes énergies. S'il en est ainsi, on aurait expliqué la disparition et l'apparition graduelles (en fonction de la température) des pics P1 et P2 , respectivement.

Dans ce qui suit, nous rappelons brièvement le mécanisme de formation de domaines ordonnés et nous décrivons ses conséquences sur les caractéristiques structurales d'un semi-conducteur. La procédure expérimentale de son investigation sera également décrite.

5.7 Mécanisme de formation de domaines ordonnés et son investigation par diffraction de RX

Dans un alliage d'InGaAsP "*non ordonné*", les éléments du groupe III et ceux du groupe V sont distribués *de façon aléatoire dans leurs sites respectifs* [238]. La structure de

l'alliage est du type zinc-blende. Dans une telle structure, chaque groupe d'éléments forme un sous-réseau cubique à faces centrées. Les deux sous réseaux sont séparés l'un de l'autre de ¼ de la diagonale de leur cellule unité. Toutefois, dans certaines conditions que nous discuterons dans les sections qui suivent, des atomes du groupe III peuvent interagir de façon préférentielle avec ceux du groupe V. Il en résulte que les éléments des deux groupes ne sont plus aléatoirement distribués dans leurs sites respectifs. Un nouveau ordre est crée! Le type d'ordre le plus fréquemment observé possède la même structure que le CuPt et dans lequel on assiste à la formation de couches constituées, alternativement, par des éléments du groupe III [172, 173], ou du groupe V [156], ou des deux groupes [156]. Ces couches sont parallèles aux plans {111} de la structure [174].

Dans cette section, nous rappelons brièvement le modèle de formation de domaines ordonnés tel que proposé par LeGoues et collaborateurs [239]. Selon ces chercheurs, lorsqu'une surface se termine par un élément du groupe V, elle se reconstitue. En effet, on sait que dans un tel site l'élément du groupe V a deux liaisons pendantes alignées le long de la direction $[1\bar{1}0]$. Pour des raisons de minimisation de son énergie, la surface tend à réduire le nombre de liaisons pendantes en liant entre eux chaque deux éléments de ce même groupe. La figure 5.8 en illustre un exemple. Dans le cas de GaAs, l'énergie de la surface baisse de 0.8 eV pour chaque dimère formé entre deux atomes d'arséniure [240].

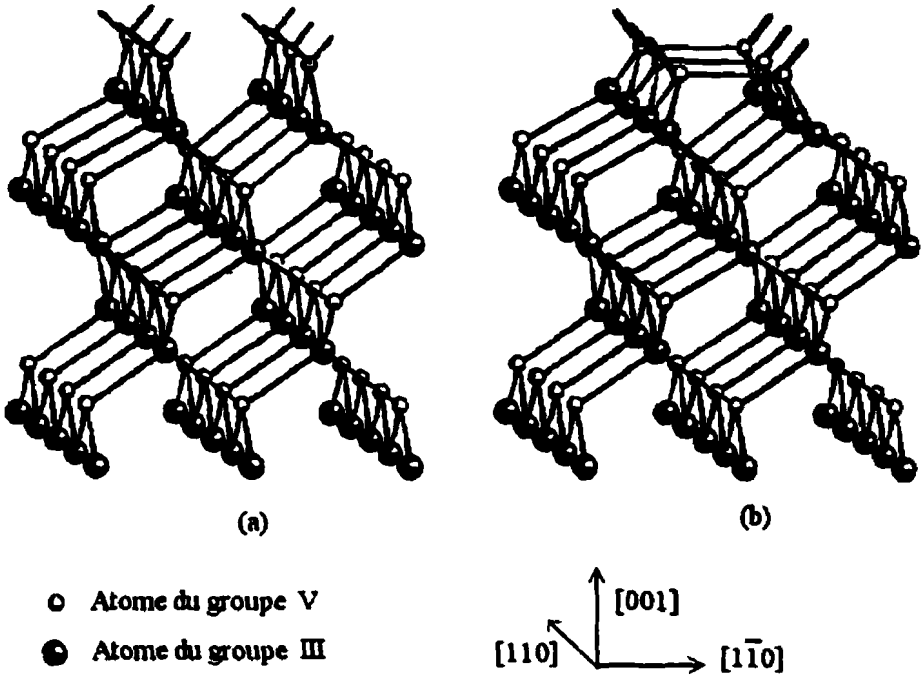


Figure 5.8: (a) Surface non reconstruite et chaque atome possède deux liaisons pendantes, (b) Réduction des liaisons pendantes par dimérisation. D'après Philips et al. [142]

La démirisation a lieu dans la direction [1$\bar{1}$0] et c'est selon cette direction qu'on a une répétition périodique de sites à caractère comprimé ou dilaté. Ainsi, l'opération de dimérisation crée des sites qui vont accueillir de façon sélective des atomes selon leurs rayons; c'est-à-dire, des sites auront une préférence pour de petits atomes et d'autres pour des plus grands. La figure 5.9 illustre l'occupation préférentielle de sites résultant d'une contrainte induite par dimérisation à la surface du substrat. Il en découle que la distribution spatiale des atomes n'est plus aléatoire, d'où la formation de domaines ordonnés.

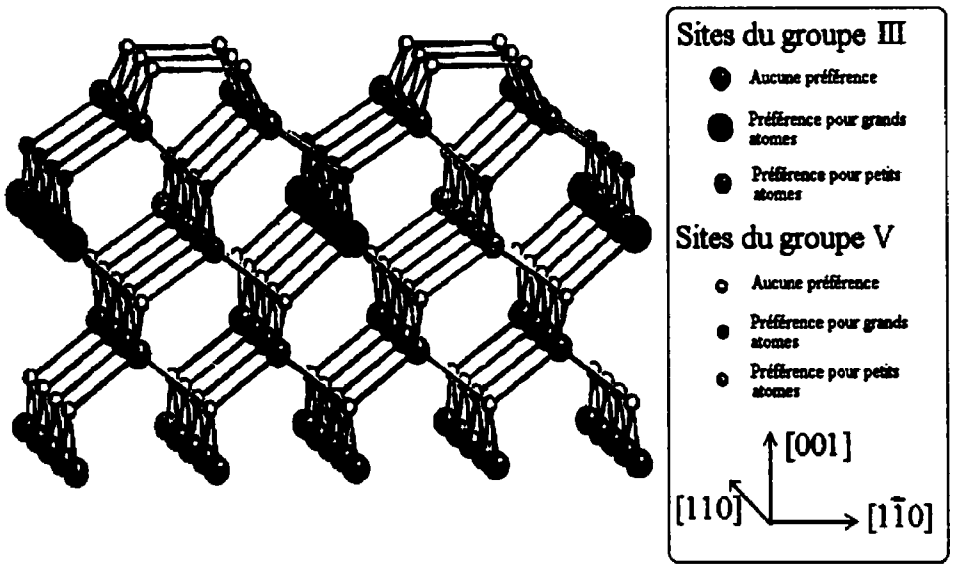


Figure 5.9: Occupation préférentielle de sites résultant d'une contrainte induite par dimérisation à la surface du substrat. D'après Philips et al. [142].

Pour l'InGaP/GaAs, l'existence d'une alternance de couche de GaP et d'InP (de l'ordre dans les éléments du groupe III) parallèles aux plans {111} a été démontrée [241] (et celles indiquées au chapitre 3). Nous montrons à la figure 5.10 les deux configurations possibles d'une structure ordonnée du type CuPt. Pour un tel ordre, nous notons l'apparition d'une nouvelle périodicité le long des directions $\left[\bar{1}11\right]$ et $\left[1\bar{1}1\right]$. L'espacement du supra-réseau, dans ces directions, est le double de celui du réseau habituel.

Un phénomène semblable a été observé dans du InGaAsP épitaxié sur de l'InP ou du GaAs [156, 172, 173, 176] (voir aussi les références du chapitre 3). Plano et collaborateurs [156] ont montré qu'aussi bien les éléments du groupe III que ceux du

groupe V peuvent occuper des sites préférentiels conduisant à la formation de domaines ordonnés dans du InGaAsP/GaAs, épitaxié par MOCVD à une température de croissance relativement basse (~ 640 °C). Par diffusion d'atomes de zinc, qui n'affectent que les sites des éléments du groupe III, Plano et collaborateurs [156] étaient parvenus à détruire partiellement l'ordre associé à l'In et au Ga. Une opération de recuit de la structure, menée à 825 °C pendant 4 heures de temps, a éliminé complètement l'occupation préférentielle de sites (l'ordre) par les éléments du groupe III et a provoqué un déplacement du pic de PL de la structure de ~130 meV vers les hautes énergies [156]. Outre les références citées dans le chapitre 3, de nombreux modèles visant à expliquer le mécanisme de formation de domaines ordonnés (durant la croissance) ont été proposés [141, 242-247]. Cependant, à notre connaissance, aucun modèle n'est parvenu à élucider de façon satisfaisante toutes les caractéristiques cristallographiques et microstructurales observées expérimentalement.

La figure 5.11 illustre la disposition régulière de domaines ordonnés dans un quaternaire (InGaAsP). Notons que l'espacement du supra-réseau dans la direction de l'ordre est le double de celui du réseau habituel. Dans ce qui suit, nous allons décrire la procédure expérimentale d'investigation d'un tel phénomène par DRXHR. Une alternance de couches ordonnées du type InAs/GaP/....InAs/GaP dans un quaternaire d'InGaAsP se traduirait par l'obtention de réflexions de RX provenant des plans réticulaires {½, ½, ½} [159]. Or, dans la pratique et pour un balayage en mode (ω,2θ), des diffractions de RX par cette famille de plans sont souvent impossibles pour les incidences ω+, ou ω-, ou les

deux à la fois. En effet, pour les plans {½, ½, ½}, l'angles ω^- vaut – 48.209° ce qui correspondrait à un détecteur placé en arrière de l'échantillon! À cause de telles difficultés géométriques, on effectue de la diffraction de RX par les plans {½, ½, n/2}où n est un entier [159].

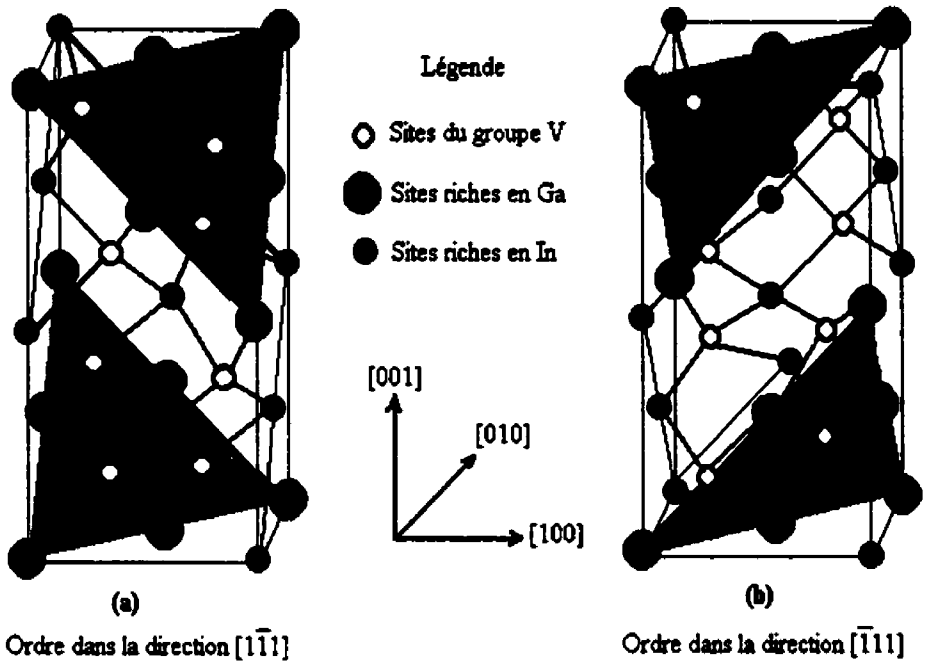


Figure 5.10: Les deux variantes d'une structure ordonnée du type CuPt.

Le tableau 5.10 contient des valeurs de certains angles de Bragg pour lesquels des réflexions de RX par les plans {½, ½, 5/2} sont techniquement possibles. Notons qu'on obtiendrait sensiblement les mêmes valeurs des angles de Bragg si on faisait les calculs pour les plan {115} mais avec une distance réticulaire $d = d_{InAs} + d_{GaP} = 11.488$ Å.

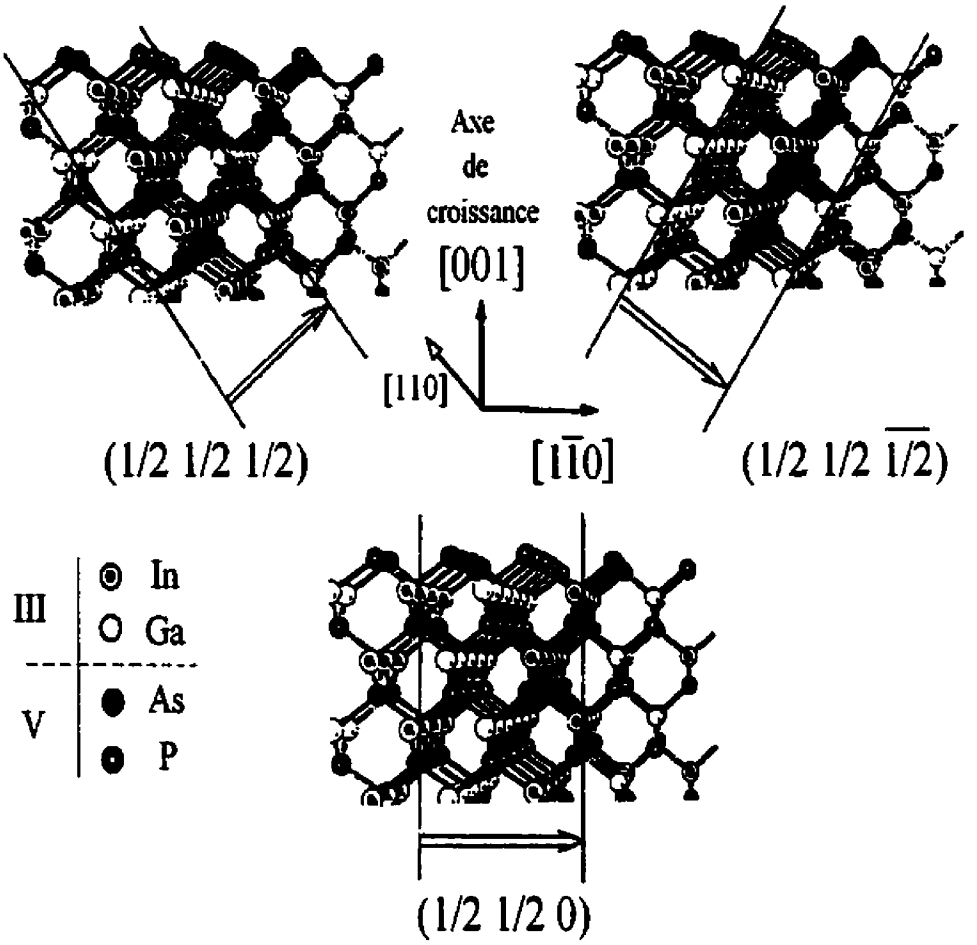


Figure 5.11: Illustration des plans {½, ½, n/2}.

Tableau 5.10 : Valeurs de d_{hkl}, θ, φ, ω^+ et ω^- pour les plans {±1/2, ±1/2, 2.5}. λ = 1.5406 Å et a = 5.8688 Å.

Plan	d_{115} (Å)	φ (°)	θ (°)	$\omega^+ = \theta + \varphi$ (°)	$\omega^- = \theta - \varphi$ (°)	2θ (°)
{±1/2, ±1/2, ½}	6.777	15.793	6.527	61.262	Négatif	13.054
{±1/2, ±1/2, 2.5}	2.259	15.793	19.938	35.731	4.145	39.876

Nous avons effectué des balayages en mode (ω,2θ) autour des angles donnés par le tableau 5.10 sans obtenir une réflexion de RX dont l'intensité soit nettement discernable du bruit de fond du système. Toutefois, il importe de rappeler que dans la majorité des cas, ce phénomène a été observé dans des couches ayant des épaisseurs allant de quelques nanomètres à quelques micromètres. Par conséquent, l'étendu des domaines ordonnés dans de telles couches permettait une réflexion de RX d'intensité détectable. Par contre, dans notre cas, les épaisseurs des PQ et des barrières sont assez faibles (~40 Å et ~100 Å). Par ailleurs, les paramètres dont dépend l'étendue d'un domaine ordonné sont : (i) l'orientation du substrat, (ii) la température de croissance de la structure [238, 242], et (iii) le rapport III/V utilisé au moment de la croissance [181]. Ces paramètres nous sont inconnus ou très peu précis. Nos investigations ont été effectuées en nous basant sur des valeurs d'inclinaisons déterminées par les simulations et qui ne représentent que des estimations des valeurs exactes. Finalement, même si un phénomène d'ordre existait dans les PQ ou les barrières, les plans réticulaires peuvent ne pas être parfaitement parallèles (entre eux) d'une couche à l'autre pour diffracter les RX dans une même direction et générer un signal détectable. Compte tenu des arguments que venons de citer, l'absence de diffraction de RX par la famille de plans {½, ½, n/2} ne constitue pas, en soit, une preuve infaillible d'inexistence de domaines ordonnés. En effet, on peut penser à des domaines ordonnés d'orientation aléatoire d'une couche à l'autre et/ou de dimensions réduites, deux facteurs suffisants pour expliquer l'absence d'une diffraction de RX d'intensité mesurable. Dans la dernière section de ce chapitre, nous proposerons

une méthode permettant la détermination de l'orientation du substrat façon précise et deux autres techniques de caractérisation structurale de très hautes résolutions.

Comme deuxième hypothèse, attribuée au comportement anomal de la PL de la structure C en fonction de la température de son réseau (chapitre 3, section 3.2.2), nous avons évoqué des paires donneurs-accepteur (DAP). Par des mesures de photoréflectance, photoluminescence et Hall-van- der Pauw, Driessen et collaborateurs [137] ont étudié les propriétés optiques et de transport du $In_{0.48}Ga_{0.52}P$ (épitaxié par MOCVD sur du GaAs) en fonction de la température. Ils ont conclu que ces propriétés étaient grandement affectées par des donneurs relativement profonds (énergie de liaison de 36 meV) confinés dans des domaines ordonnés. En effet, Driessen et collaborateurs [137] ont démontré qu'à mesure qu'ils augmentaient la température de l'échantillon, le régime de conduction changeait. Selon leurs résultats, la conductivité est dominée par les états localisée associés aux impuretés ionisées pour $T < 30$ K (hopping mode). Pour des températures comprises entre 30 K et 70K, la conductivité est essentiellement due aux donneurs chargés négativement (bande D^-). Pour des températures supérieures à 70 K, la conductivité correspond à celle par bande de conduction. Ces observations, établies par des mesures de Hall-van der Pauw, étaient en accord avec les résultats qu'ils ont obtenus par les des deux autres techniques. En effet, toujours d'après Drissen et collaborateurs [137], le pic de photoluminescence (réalisée à 4 K) se déplaçait vers les hautes énergies d'un montant variant de 4.7 à 6.1 meV à chaque fois qu'ils augmentaient la densité d'excitation d'un ordre de grandeur. Ce phénomène d'"émission mobile" (moving

emission) est assez connu par les investigateurs des propriétés optiques des semi-conducteurs. Cependant, les uns l'associent à l'existence de domaines ordonnés dans la structure [128, 130, 158, 248-251], d'autres l'attribuent à des paires donneur-accepteur [137, 187]. D'un autre côté, il a été rapporté que le temps de vie des porteurs dans des structures contenant des domaines ordonnés est extrêmement long [128] (>1 μs) même si la densité d'excitation est faible. Fouquet et collaborateurs [128] donnaient deux explications possibles à ce résultat: (i) des défauts qui ralentissent le transfert des porteurs, et conséquemment, augmentent leur temps de vie; (ii) Les porteurs sont séparés dans l'espace car les domaines ordonnés le sont.

Nous avons obtenu des résultats similaires en ce qui concerne le comportement de la PL issue de la structure C en fonction de la densité d'excitation ou de la température (figures 3.10 et 3.18 du chapitre 3). En effet, le pic de PL de la structure C s'est déplacé de ~5 meV et de ~ 7 meV pour des densités d'excitation variant de 20 à 150 W/cm^2 et de 150 à 2000 W/cm^2. Pour des densités d'excitation allant de 2000 à 6000 W/cm^2, le déplacement du pic de PL n'était que de 3 ou 4 meV. Par contre, nos résultats de photoluminescence résolue en temps (PLRT) indiquent que le temps de vie des porteurs dans la structure C est sensiblement le même que celui observé pour les porteurs dans B. Selon la longueur d'onde d'excitation et/ou la densité d'excitation, les temps de vie de porteurs varient d'une centaine de ps, tout en restant comparables d'une structure à l'autre. Ces résultats, combinés à ceux obtenus des mesures de diffraction de RX, nous indiquent que nos structure laser sont d'une bonne qualité structurale. Nous attribuons le

comportement anomal de la PL de la structure à des transitions du genre électron-accepteur ou donneur-accepteur. Un donneur ayant une énergie de liaison E_D = 15.7 meV, rapporté comme une impureté non identifié, a été observé [252-254] dans un supra-réseau d'InAsP/InP. Par ailleurs, une lacune d'arséniure (V_{As}) ayant une énergie de ~ 40 meV en dessous du minimum de la bande de conduction a été observée par des mesures d'effet Hall dans du GaAs épitaxié par MOCVD [255-258]. Quant aux accepteurs, du Zn [253-262] utilisé comme dopant ou du carbone comme impureté résiduelle de croissance par MOCVD ont été observés [255-258, 261, 262]. Les énergies de liaison du Zn sont de 44.9 meV dans de l'InP [252-254] et de 29.5 meV dans du GaAs [255-258, 261, 262]. Le carbone a été observé à 31.5 meV au dessus du sommet de la bande de valence dans du GaAs [255-258, 261, 262]. Le déplacement du pic de PL de la structure C vers les de plus basses énergie suite à une augmentation de la température de son réseau est compatible avec la présence d'accepteur.

Nous suggérons de poursuivre les investigations en faisant appel à d'autres techniques qui permettent une meilleure caractérisation microstructurale des échantillons. La diffraction de RX de haute résolution standard est incapable d'isoler les diverses contributions des différents phénomènes physiques. Dans ce qui suit, nous parlerons de perspectives de recherches en suggérant la microscopie électronique en transmission (MET) et la cartographie du réseau réciproque comme des techniques de caractérisation plus puissantes que la DRXHR.

5.8 Perspectives de recherches

5.8.1. En vue d'une meilleure caractérisation structurale

Pour déterminer l'orientation du substrat de façon précise, il faut mesurer la position angulaire du pic de diffraction associée à la couche et la différence angulaire qui sépare ce pic de celui du substrat en fonction de l'angle de rotation de l'échantillon (Ψ) autour de la normale à sa surface. Entendons-nous que l'échantillon n'est pas en rotation continue au cours d'une mesure, mais d'une mesure à l'autre on le tourne de 10° (par exemple). Chacun des paramètres mesurés varie comme un sinus avec l'angle Ψ. À partir de la relation entre leur phase et leur amplitude on détermine l'inclinaison de la normale au substrat par rapport à celle de la couche [219].

La microscopie électronique en transmission (MET) permet de sonder les caractéristiques structurales d'un matériau et d'en donner des images aussi bien dans l'espace réel (par reconstitution d'une image) que réciproque (par diffraction d'électrons). Étant d'une très haute résolution, cette technique a été utilisée par de nombreux groupes de recherche pour ce genre de caractérisation. Toutefois, elle nécessite une préparation laborieuse du matériau. Dans ce qui suit, nous présentons la procédure à suivre. À la figure 5.12, nous présentons un schéma de l'empilement des couches constituant une structure semblable à nos échantillons. En premier lieu, il faut couper une tranche transversale la plus mince possible. Sur la figure 5.12, cette coupe est indiquée par les segments AB et BC. Une

autre possibilité serait de découper un cylindre (~ 500 µm de diamètre) dans le sens horizontal si l'épaisseur de la structure le permet, sinon vertical et on aura à se débarrasser du substrat.

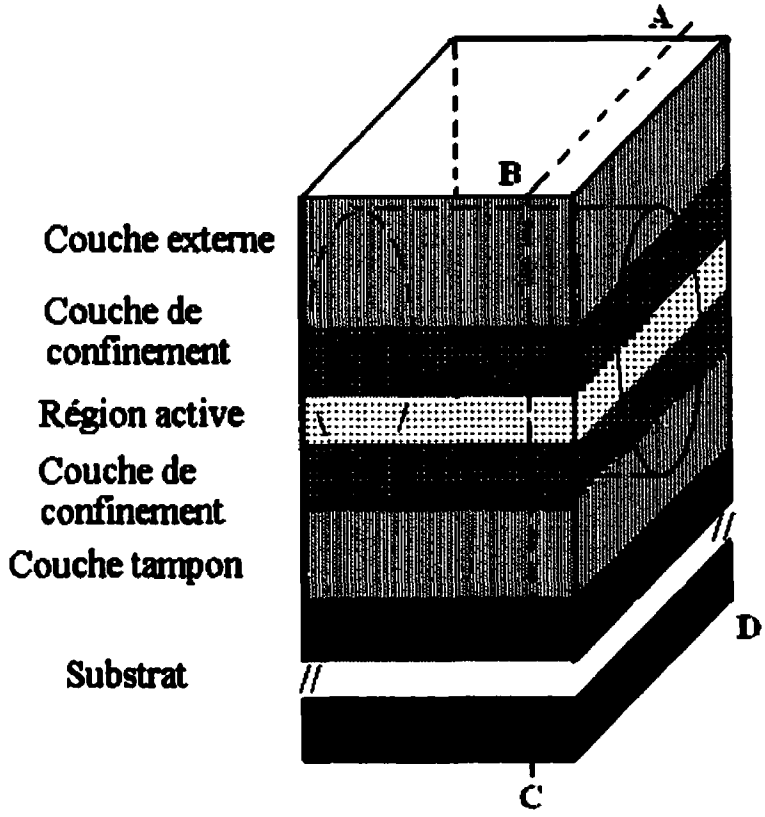


Figure 5.12 : Schéma de l'empilement des couches et illustration des coupes.

Ensuite, par gravure chimique en premier lieu et bombardement par des ions d'argon en deuxième lieu, on doit amincir davantage (jusqu'à ~ 10 µm) la tranche ou le cylindre coupé précédemment. Sur le spécimen ainsi obtenu, on effectue des mesures de microscopie par transmission d'électrons. Cette dernière étape de préparation ainsi que le sens de balayage des électrons sont représentés sur la figure 5.13.

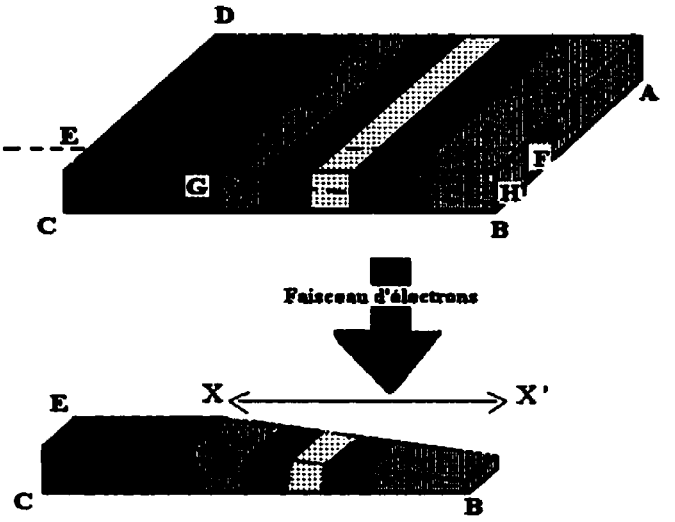


Figure 5.13 : Illustration de la gravure et du sens de balayage par les électrons.

La diffraction de RX de haute résolution (DRXHR) standard (balayage en mode (ω,2θ)) a certaines faiblesses. En effet, la longueur d'absorption des RX générés par une source conventionnelle (de laboratoire) est de ~ 10 µm [263]. Or, en général, l'épaisseur totale des couches d'un laser à semi-conducteur n'est que de quelques microns. Par conséquent, un spectre de DRXHR contient des informations qui concernent l'épaisseur totale et on ne peut même pas distinguer l'emplacement des couches les unes par rapport aux autres dans une hétérostructure. Sachant que la longueur de pénétration des RX diminue avec la diminution de l'angle d'incidence, on pourrait effectuer une série de réflexions (de RX) asymétriques pour recueillir des informations à différentes profondeurs de l'échantillon. Malheureusement, le nombre de réflexions asymétriques convenables (facile dans la pratique) est limité. Les variations des propriétés structurales

avec la profondeur ne peuvent être sondées de façon continue! La cartographie du réseau réciproque permet de palier, en partie, aux insuffisances de la DRXHR standard. En effet, on peut sonder des hétérostructures à différentes profondeurs. La figure 5.13a montre que les balayages dans les modes (ω, 2θ) et ω sondent l'espace réciproque dans les directions parallèle et orthogonale au vecteur $\vec{G}$, respectivement.

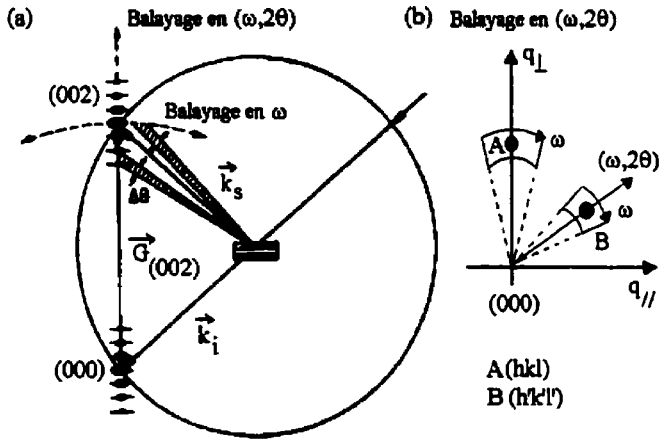


Figure 5.14: (a) Sphère d'Ewald illustrant la corrélation entre type d'information et mode de balayage. (b) Principe de la cartographie du réseau réciproque. $q_{//}$ et $q_\perp$ sont des coordonnées du réseau réciproque [218]

Cela implique qu'on peut tracer une carte de l'intensité de RX diffractés par un point du réseau réciproque repéré par les indices de Miller (hkl). On obtient cette carte en maintenant l constant et en faisant varier h de ±Δh et k de ±Δk tel qu'illustré à la figure 5.13b. Dans la pratique, cela se traduit par effectuer un certain nombre de balayages par le détecteur (en mode 2θ) pour une séquence de valeurs différentes de ω (voir figure 2.12, du chapitre 2). En observant la distribution de l'intensité de RX diffractés, on peut

évaluer séparément les effets des défauts structuraux, des contraintes, et de la qualité des interfaces [263]

5.8.2. En vue d'une meilleure caractérisation des propriétés optiques et de transport des structures laser

Dans notre laboratoire, nous disposition d'un laser Ti-saphir, d'un laser Cr^{4+}-YAG et d'un montage de PLRT. Les deux lasers peuvent fonctionner aussi bien en mode continu que pulsé. Ce genre d'équipement offre la possibilité d'une meilleure investigation de la dynamique utlta-rapide des porteurs. Dans ce qui suit, nous proposons des perspectives de recherches en précisant leurs objectifs.

Nos mesures par photoluminescence résolue en temps ont révélé que les temps de montée et de descente de la PL des PQ diminuent considérablement avec l'augmentation de la longueur d'onde d'excitation. Ce résultat est prévisible. En effet, une diminution de l'énergie d'excitation est accompagnée, entre autres, par les phénomènes physiques suivants: (i) une baisse de l'énergie communiquée aux porteurs; ces derniers relaxent et atteignent un équilibre thermique plus rapidement. (ii) Selon la longueur d'onde d'excitation, les couches des régions de confinement ayant un gap élevé peuvent ne pas être excitées. Les porteurs sont alors excités dans les PQ et les régions qui leur sont proches. Le temps de transport, qui constitue une composante des temps de montée et de descente, est ainsi réduit (ou éliminé). Nous avons appliqué cette approche pour nos

mesures par PLRT présentées au chapitre 4. Cependant, nous avons utilisé uniquement le laser Ti-spahir. Sa plus grande longueur d'onde est de 880 nm (1.408 eV). Dans ce qui suit, nous décrivons une approche de continuation de recherche, qui à notre avis, permettra d'étendre notre compréhension de la dynamique ultra-rapide des porteurs.

Le laser Cr^{4+}-YAG est accordable dans la plage 1345-1557 nm (0.796-0.921 eV). Les barrières et les couches de confinement sont transparentes à cette gamme de longueurs d'ondes. En ajustant la longueur d'onde et la densité d'excitation, le laser Cr^{4+}-YAG permet d'exciter sélectivement les niveaux E_1 ou E_1 et E_2 dans les puits quantiques en les peuplant graduellement jusqu'à la saturation. Les luminescences des transitions C1-HH1, C1-LH1, C2-HH2 sont alors contrôlables.

Dans un premier temps, on peut étudier la variation de la dynamique des porteurs d'un niveau des PQ à un autre en se servant uniquement du laser Cr^{4+}-YAG en mode pulsé (largeur d'une impulsion ~300 fs). Le temps de transfert (transport) des porteurs est éliminé. Seul le temps de relaxation est étudié en fonction des niveaux excités des PQ et de la densité d'excitation. La précision associée à ce temps est limitée par la convolution de la largeur de l'impulsion laser et de la résolution temporelle et spectrale du montage. Les temps de montée et de descente qu'on obtiendrait seront comparés à ceux que nous avons déjà obtenus en excitant toutes les couches de la structure. Dans un deuxième temps, on peut faire de la PLRT en excitant l'échantillon avec deux lasers (Cr^{4+}-YAG en mode continue et Ti-saphir en mode pulsé) simultanément. On observera la dynamique

des porteurs dans les barrières et les régions de confinement en peuplant graduellement les niveaux des PQ. Procéder ainsi permettra d'observer les effets d'une saturation graduelle des niveaux d'énergie des PQ sur les processus de transfert, de relaxation, de capture, et d'échappement des porteurs. La densité d'excitation associée au laser Ti-saphir doit être maintenue au strict minimum nécessaire pour ne pas saturer les niveaux des PQ.

5.9 Conclusion

Nous avons caractérisé par diffraction de RX de haute de résolution les trois hétérostructures laser à PQM. Les paramètres de mailles de toutes les couches constituant les hétérostructures, ainsi que les contraintes associées, ont été évalués à partir des spectres expérimentaux et par des simulations. Les valeurs obtenues à partir des spectres expérimentaux sont surestimées. Des phénomènes physiques, à l'origine de cette surestimation, ont été discutés. Les paramètres de maille déduits à partir des simulations ainsi que la présence de franges (petites oscillations) dans les spectres suggèrent que les taux de relaxation sont faibles. Ce résultat corrobore ceux obtenus par PLRT, à savoir qu'un temps de vie des porteurs de l'ordre de la nanoseconde suggère une bonne qualité structurale. Cependant, les spectres expérimentaux et les simulations indiquent que tout en ayant des mailles tétragonales, la croissance des structures n'était pas pseudomorphiques. Les relaxations sont partielles.

L'allure des spectres de la structure C, incluant la netteté des franges, la largeur à mi-hauteur et sa constance en fonction de l'ordre de diffraction prouve l'absence de dislocation due à une épaisseur de la région active dépassant une valeur critique. Ce résultat a écarté l'hypothèse voulant attribuer le comportement anomal de la PL issue de la structure C à un défaut structural. Après vérification nous avons écarté la deuxième hypothèse proposant l'existence de domaines ordonnés. Nous avons attribué ce comportement anomal de la PL à des transitions électron-accepteur.

Finalement, nous avons parlé de l'aspect qualitatif du type d'informations fournies par la DRXHR standard et nous avons précisé les limites de cette technique. Nous avons conclu ce chapitre par proposer des perspectives de recherches.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans cette thèse, nous avons étudié les propriétés optiques et structurales de trois structures laser à puits quantiques multiples (PQM) d'InGaAsP/InP. Nous avons étudié la relaxation et la recombinaison des porteurs, en régime stationnaire, à l'aide de la photoluminescence (PL-cw). La dynamique ultra-rapide des porteurs, incluant le transport, la relaxation et la capture par les puits quantiques a été étudiée en régime transitoire à l'aide de la photoluminescence résolue en temps (PLRT). Les caractéristiques structurales des hétérostructures laser ont été étudiées à l'aide de la diffraction de rayons de haute résolution (DRXHR). À partir des données expérimentales obtenues par cette technique et des simulations de ces dernières, nous avons été en mesure d'évaluer les compositions, les contraintes et les taux de relaxation de toutes les couches constituant nos hétérostructures. De plus, les orientations des substrats ont été déterminées.

Par photoluminescence standard, nous avons étudié les mécanismes de relaxation des porteurs. Nous avons effectué et comparé des mesures de photoluminescence à plusieurs températures du réseau, allant de 4 K à 300. Nous avons montré que pour deux structures sur trois, la diminution du gap avec l'augmentation de la température du réseau était typique. Pour la troisième structure, nous avons noté un comportement anomal de sa

photoluminescence en fonction de la température du réseau (T_L). Aux hautes T_L, la luminescence est attribuée aux transitions typiques dans un puits quantique, C1-HH1. En baissant graduellement la température du réseau, nous avons noté l'apparition d'un nouveau pic de photoluminescence (à $T_L \sim 100$ K), situé du côté des basses énergies et d'intensité plus faible que le premier. En continuant de baisser T_L, une inversion des intensités s'était produite. En combinant les résultats obtenus par les trois techniques, nous avons attribué ce pic à des transitions du type électron-accepteur. Concernant l'origine de pic, les deux autres hypothèses possibles, à savoir, une relaxation de la structure due à une épaisseur dépassant une valeur critique ou une formation de domaines ordonnés ont été écartées. De plus, nous avons montré qu'aux faibles densités d'excitation et aux basses températures de réseau, les caractéristiques de la photoluminescence (largeur à mi-hauteur des pics, par exemple) dépendent essentiellement de la durée de vie finie des porteurs. Par contre, aux hautes températures de réseau, nous avons montré que la relaxation des porteurs se fait principalement par émission de phonons optiques longitudinaux (LO) dont l'énergie a été estimée à ~8 meV. Les mécanismes de relaxation sont donc essentiellement non radiatifs.

Afin de comprendre les effets de la densité d'excitation sur les mécanismes de relaxation des porteurs et sur l'efficacité de capture des porteurs par les puits quantiques, nous avons étudié l'évolution de la photoluminescence dans les trois structures en fonction de la densité d'excitation à deux températures de réseau, 77 K et 300 K. Dans cette section, nous nous intéressons à l'intensité de la photoluminescence. À 77 K et sous de faibles

densités d'excitation, les recombinaisons sont radiatives. Néanmoins, nous avons établi que les centres de piégeages de porteurs, dus à une rugosité ou imperfection d'interface, constituent des sites actifs de recombinaisons non radiatives. Avec l'augmentation de la densité d'excitation, ces centres se saturent et leurs effets diminuent. Par contre, les recombinaisons non radiatives du type Auger deviennent non négligeables.

À partir de l'évolution de la photoluminescence avec la densité d'excitation nous avons montré que des phénomènes, tels que le remplissage de bande, des fluctuations des épaisseurs des couches de la région active, des variations des hauteurs de potentiel dues à des inhomogénéités de compositions dans les puits quantiques (ou les barrières) ou des défauts structuraux ou d'interfaces ont une grande influence les spectres de photoluminescence des hétérostructures. Ces phénomènes affectent des caractéristiques importantes d'un laser telles que la longueur d'onde d'émission et la largeur à mi-hauteur de la luminescence. Nous avons montré que les positions des pics de photoluminescence se déplaçaient vers les hautes énergies et que les largeurs à mi-hauteur des spectres augmentaient. Nous avons montré que le phénomène de remplissage de bande est prononcé pour la structure ayant une région active (et/ou la région de confinement) la moins épaisse. La température effective de porteurs est plus élevée dans ce genre structure ce qui corrobore le phénomène de remplissage de bandes.

Ensuite, à l'aide de la technique de photoluminescence résolue en temps, nous avons étudié le transport, la relaxation des porteurs et leur capture par les puits quantiques.

Nous avons montré que les échantillons, sans être parfaits, sont de bonne qualité. Nous avons observé le transfert des porteurs depuis la couche tampon d'InP, jusqu'aux puits quantiques, en passant par la région de confinement et les barrières. Des simulations Monte Carlo de nos résultats expérimentaux obtenus pour la structure A, réalisées au sein de notre équipe de recherche, ont montré que la condition de neutralité de charges n'était pas satisfaite pour un délai de 10 ps après excitation de l'échantillon. Ce résultat s'explique par une masse effective de trous plus élevée. De plus, nous avons montré que la densité moyenne de trous demeure supérieure à celle des électrons pour une durée de temps dépassant les 100 ps. Tenant compte de ce résultat et du fait que les trous, comparativement aux électrons, sont excités à de plus basses énergies, nous avons conclu que les temps de vie sont les mêmes pour les deux types de particules.

Nos résultats expérimentaux montrent que l'intensité des recombinaisons dans les barrières est faible et décroît plus rapidement comparativement à celle des puits quantiques. Cela s'explique par un transfert de porteurs très rapides vers les puits quantiques. La durée de temps associée à ce transfert peut être négligée dans nos structures. De plus, nous avons observé une signature de transport des porteurs depuis les régions de confinement jusqu'aux puits quantiques. Selon la température de réseau et la densité d'excitation, nous avons estimé les temps de transport et de capture. Pour une densité d'excitation de 1000 W/cm^2 et à une température de réseau de 77 K, nous avons obtenu des temps de transport et de capture comparables (~4 ps et ~3.5 ps, respectivement). Les temps de montée et de descente de la PL augmentent avec la

densité d'excitation. Nous avons montré qu'à une grande densité d'excitation, la relaxation des porteurs est ralentie par le phénomène de remplissage de bandes et l'écrantage des interactions électron-phonon. Ce résultat expérimental corrobore ceux des simulations Monte Carlo qui montrent que les électrons atteignent plus rapidement un état d'équilibre lorsque l'écrantage des interactions porteur-phonon est négligeable. Pour un délai de 5 ps, l'énergie moyenne des électrons est 5 fois supérieure à sa valeur en l'absence d'écrantage. Les interactions électron-électron ou trou-trou n'affectent pas la relaxation dans les puits quantiques mais, elles causent une légère augmentation de l'énergie moyenne des électrons dans les barrières. Quant aux interactions électron-trou, elles diminuent l'énergie moyenne des électrons. Aussi, nous avons montré qu'à une basse température de réseau, le temps de montée augmente sensiblement. Nous avons attribué ce comportement à des effets de localisation de fonction d'onde causée par des fluctuations d'épaisseur et/ou des imperfections d'interfaces.

Par ailleurs, nous avons montré qu'une diminution de la longueur d'onde d'excitation augmente la température effective initiale des porteurs et réduit leur taux de relaxation. Par température initiale, nous entendons la température à laquelle les porteurs sont, immédiatement après excitation par impulsion laser. Nous avons interprété ce résultat comme suit. En combinant l'effet d'un plus grand supplément d'énergie communiqué aux électrons avec celui d'une température effective initiale plus élevée, deux phénomènes peuvent avoir lieu: (1) un transfert d'une portion de la population d'électrons vers la vallée subsidiaire L suivi d'un retour vers Γ; (2) le phénomène de

porteurs chauds et/ou phonons chauds devient plus prononcé. L'un et (ou) l'autre des deux phénomènes conduisent (conduit) à une augmentation du temps de montée de la photoluminescence et à une diminution du taux de refroidissement des porteurs.

Dans le chapitre 5, nous avons étudié les caractéristiques structurales des trois structures lasers à puits quantiques multiples à l'aide de la diffraction de rayons X de haute résolution. Après une brève discussion portant sur l'utilité de cette technique ainsi que ses limites, nous avons analysé les résultats expérimentaux et leurs simulations. Nos résultats montent que les structures sont d'une assez bonne qualité structurale. Toutefois, en nous basant sur les largeurs à mi-hauteur des pics de diffraction d'ordre supérieur et sur les intensités des pics satellites, nous avons décelé une rugosité d'interface et/ou des fluctuations des épaisseurs des puits quantiques et des barrières. Ces résultats corroborent ceux obtenus par photoluminescence standard. De plus, nous avons montré que le zinc, utilisé très souvent comme dopant de l'InP dans des hétérostructures d'InGaAsP/InP, peut diffuser vers la région active et introduit un gradient de composition observable dans les spectres de diffraction de rayons X de haute résolution. Un tel effet est plus prononcé dans la structure B pour laquelle nous avons observé, par PL standard, un pic de luminescence que nous avions attribué au zinc.

À partir des résultats expérimentaux et de ceux des simulations, nous avons évalué les paramètres de mailles (orthogonaux et parallèles aux plans des couches), les compositions et les taux de relaxation de toutes les couches constituant les trois

hétérostructures. Nous avons montré que les compositions réelles des structures sont différentes de celles visées au moment de leur croissance. Évidemment, il en est de même pour les contraintes. De plus, nous avons montré que les structure B et C, supposées ne différer que par le nombre de puits quantiques, ont des compositions et/ou des largeurs de PQ légèrement différentes. Une fois encore, ce résultat corrobore ceux des photoluminescences standard et résolue en temps. En effet, les pics de PL issue des PQ des structures B et C, présentent constamment une différence de positions allant de ~ 5 à 10 meV.

Selon la littérature, l'épaisseur globale de la région active de la structure C (1920 Å) dépasse une épaisseur critique estimée être entre 160 et 360 Å. Ainsi, cette structure devrait relaxer et dans ses spectres de PL on devrait observer des signatures de recombinaisons associées à des défauts structuraux (dislocations). Une autre école de pensée propose qu'en augmentant le nombre de puits quantiques et/ou la contrainte, on doive observer une dégradation de la PL attribuée à la formation d'une alternance de domaines ordonnés. Les caractéristiques d'une dégradation de la PL sont les suivantes: (i) une réduction de l'intensité de la PL, (ii) un pic assez large et dont la position n'évolue que très peu avec la température du réseau, et souvent (iii) un dédoublement du pic aux basses températures.

Malgré que nous ayons observé un comportement semblable de la structure C, nos mesures expérimentales de diffraction de RX de haute résolution montrent qu'aucun

phénomène, parmi ceux proposés par la vaste littérature et mentionné ci-dessus, ne peut être attribué à un tel comportement. Les spectres de DRXHR de la structure C montrent qu'elle est d'une assez bonne qualité et que, surtout, l'hypothèse d'existence de dislocations dans cette structure est à écarter. Quant à la deuxième hypothèse, proposant la formation de domaines ordonnés, nous avons procédé à sa vérification après l'avoir décrite. Nous n'avons pas obtenu de diffraction de RX, d'intensité détectable, provenant des plans {1/2, 1/2, 5/2} pour prouver l'existence de domaines ordonnés. Le comportement de la PL en fonction de la température du réseau et en fonction de la densité d'excitation, observé au chapitre 3 est attribué à des recombinaisons du type électron-accepteur. Toutefois, certains facteurs pouvant avoir compliqué ou inhibé l'observation de domaines ordonnés ont été identifiés.

Pour qu'une famille de plans {1/2, 1/2, 5/2} diffracte des RX d'intensité détectable, il faut que les domaines ordonnés aient une certaine étendue. Or, dans notre cas, les épaisseurs des PQ et des barrières sont assez faibles (~40 Å et ~100 Å). Par ailleurs, nos investigations ont été effectuées en nous basant sur des valeurs d'inclinaisons déterminées par les simulations et qui ne représentent que des estimations des valeurs exactes. Finalement, nous pensons que même si un phénomène d'ordre existait dans les PQ ou les barrières de la structure C, les plans réticulaires associés à un tel ordre peuvent ne pas être parfaitement parallèles (entre eux) d'une couche à l'autre. Par conséquent, on n'aura pas de diffraction de RX dans une même direction pour que le signal soit

détectable. Compte tenu des arguments que venons de citer, nous avons proposé, à la fin du chapitre 5, de nouvelles perspectives de recherches.

Une récapitulation de l'ensemble des résultats montre que nous avons atteint, dans une large mesure, les objectifs que nous nous sommes fixés au début de cette thèse. En effet, nous avons mesuré les temps de transport et de capture des porteurs dans les trois hétérostructures. Selon les conditions expérimentales de température de réseau, de longueur d'onde d'excitation et de densité d'excitation, les temps de transport et de capture varient entre ~ 4 ps et 15 ps et ~ 3 ps et ~ 6 ps, respectivement. Ces temps sont jugés très élevés pour avoir une large bande de modulation. De plus, nous avons observé une augmentation du temps de montée de la photoluminescence des puits quantiques suite à une diminution de la longueur d'onde d'excitation. À notre connaissance, cette augmentation est observée pour la première fois dans les quaternaires. Elle est de l'ordre de ~3 ps et nous l'avons attribuée à un aller et retour d'électrons entre les vallées Γ et L. Par ailleurs, nous avons identifié des mécanismes physiques qui ont pour effet de réduire le taux de relaxation des porteurs. Les mécanismes les plus importants sont: (i) les recombinaisons non radiatives du type Auger, (ii) le phénomène de remplissage de bandes, (iii) l'écrantage des interactions électron-phonon, et (iv) le phénomène de porteurs chauds et/ou de phonons chauds. Quant aux fluctuations des épaisseurs des couches de la région active et aux inhomogénéités de sa composition, elles créent des variations des hauteurs de potentiel et causent une localisation des fonctions d'ondes. Cela génère des sites actifs de recombinaisons non radiatives et limite l'efficacité de

capture des porteurs par les puits quantiques. L'ensemble de ces phénomènes affecte l'une ou l'autre des caractéristiques d'un laser. Nous pensons, entre autres, à la longueur d'onde d'émission, à la largeur à mi-hauteur de la raie, au courant seuil et à la fréquence de modulation maximale.

BIBLIOGRAPHIE

1. POLLACK, M. A., R. E. NAHORY, J. C. DEWINTER, et A. A. BALLMAN, (1978), Appl. Phys. Lett., vol. **33**, p. 314.

2. MORTON, P. A., T. TANBUN-Ek, R. A. LOGAN, N. CHAND, K. W. WECHT, A. M. SERGENT, et P. F. Jr SCIORTINO, (1994), Electron. Lett. vol. **30**, p. 2044.

3. WEISSER, S., C. LARKINS, K. CZOTSCHER, W. BENZ, J. DALEIDEN, I. ESQUIVIAS, J. FLEISSNER, J. D. RALSTON, B. ROMERO, R. E. SAH, A. SCHONFELDER et J. ROSENZWEIG, (1996), IEEE Photon. Technol. Lett., vol. **8** p. 608.

4. SUEMUNE, I., L. A. COLDREN, M. YAMASHINI, et Y. KAN, (1988), Appl. Phys. Lett, vol. **53**, p. 1378

5. LESTER, L. F., S. D. OFFSEY, B. K. RIDLEY, W. J. SCHAFF, B. A. FOREMAN et L. F. EASTMAN, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **59**, p. 1162.

6. IKEGAMI, T., et Y. SUEMATSU, (1968), Electron. Commun. Japan, vol. **B-51**, p. 51.

7. PAOLI, T. L., et J. E. RIPPER, (1970), Proc. IEEE, vol. **58**, p. 1457-1465.

8. THOMPSON, G. H. B., (1980), Physics of semiconductor laser Devices, New York, Wiley, p. 402.

9. SUEMATSU, Y., (1983), "Long-wavelength optical fiber communication" Proc. IEEE, vol. **71**, p. 692.

10. LAU, K. Y., et A. YARIV, (1985), dans les éditions W. T. Tsang, Lightwave Communication Technology, New York : Academic, p. 69.

11. TUCKER, R. S., (1985), J. Lightwave Technol, vol. **LT-3**, 1180.

12. LAU, K.Y., et A.YARIV, (1985), IEEE J. Quantum Electron., vol. **QE-21**, p. 121.

13. BOWERS, J. E., B. R. HEMENWAY, A. H. GNAUCK, et D. P. WILT, (1986), IEEE J. Quantum Electron., vol. **QE-22**, p. 833.

14. OLSHANSKY, R., P. HILL, V. LANZISERA, et W. POWAZINICK, (1987), IEEE. J. Quantum Electron., vol. **QE-23**, p. 1410.

15. SHONFELDER, A., S. WEISSER, I. ESQUIVIAS, J. D. RALSTON, et J. ROSENZWEIG, (1994), IEEE Photonics Technolgy Letters, vol. **6** (4), p. 475.

16. AGRAWAL, G. P., (1987), IEEE J. Quantum. Electron., vol. **QE-30**, p.860.

17. AGRAWAL , G. P., (1988), J. Appl. Phys. **63**, p.1232.

18. RIDEOUT, W., W. F. SHARFIN, E. S. KOTELES, M. O. VASSEL, et B. ELMAN, (1991), IEEE Photon. Technol. Lett. **3** (9), p. 784.

19. FRANKENBERGER, R. et R. SCHIMPE, (1992), Appl. Phys. Lett. **60**, p. 2720.

20. TSAI CHIN-Yi, CHIN-YAO TSAI, YU-HWA LO, et R. M. SPENCER, (1995), Appl. Phys. Lett. vol. **67**, p. 3084.

21. UOMI, K., T. TSUCHIYA, M. AOKI, et N. CHINONE, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **58**, p. 675.

22. SU, C. B., (1988), Appl. Phys. Lett. vol. **53**, p. 950.

23. EOM, J. et C. B. SU, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, p. 613.

24. HARDER, CH. S., B. J. VAN ZEGHBROEK, M. P. KESLER, H. P. MEIER, P. VETTIGER, D. J. WEBB, et P. WOLF, (1990), IBM J. Res. Develop., vol. **34**, p. 568.

25. LAU, K. Y., (1993), dans "*Quantum Well Lasers*", édité par P. S. Zory, Jr. (Academic San Diego) p. 217.

26. TSAI, C. Y., C. Y. TSAI, Y. H. LO, R. M. SPENCER, et L. F. EASTMAN, (1995), IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron, vol. **1**, p. 316.

27. NAGARAJAN, R., T. FUKUSHIMA, S. W. CORZINE, et J. E. BOWERS, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **59**, p. 1835.

28. NAGARAJAN, R., T. FUKUSHIMA, M. ISHIKAWA, J. E. BOWERS, R. S. GEEL, et L. A. COLDREN, (1992), IEEE Photon. Technol. Lett., vol. **4** (2) p. 121.

29. KAN, S. C., D. VASSILOVSKI, T. C. WU, et K. Y. LAU, (1992), Appl. Phys. Lett., vol. **61**, p. 752.

30. GRABMAIER, A., M. SCHOFTHALER, A. HANGLEITER, C. KAZMIERSKI, M. BLEZ, et A. OOGAZZADEN, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **62**, p. 52.

31. KAZARINOV, R. F. et M. R. PINTO, (1994), IEEE J. Quantum Electron., vol. **30**, p. 49.

32. RIBEIRO, R. F. S., J. R. F. DA ROCHA, A. V. T. CARTAXO, H. J. A. DA SILVA, B. FRANZ, et B. WEDDING, (1995), IEEE Photon. Tech. Lett., vol. **7** (8), p. 857.

33. KAN, S. C., D. VASSILOVSKI, T. C. WU, et K. Y. LAU, (1992), IEEE Photon. Technol. Lett., vol. **4**, p. 428.

34. KAN, S. C., D. VASSILOVSKI, T. C. WU, et K. Y. LAU, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **62** (19), p. 2307.

35. WANG, J., UWE A. GRIESINGER, et H. SCHWEIZER, (1996), Appl. Phys. Lett., vol. **69** (11), p. 1585.

36. LEFEBVRE, K. R. et A. F. M. ANWAR, (1996), J. Appl. Phys., vol. **80** (6), p. 3595.

37. BIMBERG, D. et J. MYCIELSKY, (1985), Phys. Rev. **B**, vol. **31** (8), p. 5490.

38. BIMBERG, D. et J. MYCIELSKY, (1986), J. Phys. **C**, vol. **19**, p.2363.

39. RUHLE, W. W. et K. LEO, (1988), Phys. Stat. Sol. **B**, vol. **149**, p. 215.

40. DEFONZO, A. P. et G. GOMATAM, (1989), Appl. Phys. Lett., vol. **54**, p. 1734.

41. LESTER, L. F. et B. K. RIDLEY, (1992), J. Appl. Phys., vol. **72**, p. 2579.

42. WILLATZEN, M., A. USKOV, J. MORK, H. OLESON, B. TROMBORG, et A. P. JANHO, (1991), IEEE Photon. Tech. Lett., vol. **3** (7), p. 606.

43. TSAI, C.-Y., C.-Y. TSAI, Y.-H. LO, et L. F. EASTMAN, (1995), IEEE J. Quantum. Electron., vol. **31** (12), p. 2148.

44. GOMATAM, B. N. et A. P. DEFONZO, (1990), IEEE J. Quantum Electron., vol. **26**, p. 1689.

45. MORK, J., J. MARK, et P. SELTZER, (1994), Appl. Phys. Lett., vol. **64** (17), p. 2206.

46. UJI, T., K. IWAMOTO, et R. LANG, (1983), IEEE Trans. Electron. Devices, vol. **30**, p. 316.

47. HAUSSER, S., G. FUCHS, A. HANGLEITER, K. STREUBEL, et W. T. TSANG, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, p. 913.

48. NAGLE, J., S. HERSEE, M. RAZEGHI, M. KRAKOWSKI, B. DE CREMOUX, et C. WEISBUSH, (1986), Surface Science, vol. **174**, p. 148.

49. NAGLE, J. et C. WEISBUSH, (1988), SPIE, vol. **943**, p. 76.

50. WANG, J. et H. C. SCHWEIZER, (1997), IEEE J. Quantum Electron., vol. **33** (8), p. 1350.

51. SHAH, J., (1992), dans "*Ultrafast Luminescence Studies of Carrier Relaxation and Tunneling in Semiconductor Nanostructures* , dans Hot Carriers in Semiconductor Nanostructures : Physics and Applications, edited by Jagdeep Shah, New York Academic Press, p. 282.

52. TSAI, C. Y., L. F. EASTMAN, et Y. H. LO, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **63** (25), p. 3408.

53. CORZINE, S. W., R. H. YAN, et L. A. COLDREN, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **57**, 2835.

54. SHIMIZU, J., H. YAMADA, S. MURATA, A. TOMITA, M. KITAMURA, et A. SUZIKI, (1991), IEEE Photonics Technolgy Letters, vol. **3** (9), p. 773.

55. WU, T. C., S. C. KAN, D. VASSILOVSKI, et K. Y. LAU, (1992), Appl. Phys. Lett., vol. **60**, 1794.

56. SEKI, S., T. YAMANAKA, W. LUI, Y. YOSHIKUNI, et K. YOKOYAMA, (1994), IEEE J. Quantum Electronics, vol. **30**, p.500.

57. RUSEK, P. et M. S. WARTAK, (1996), Microwave and Optical technolgy Letters, vol. **11**, p. 24.

58. BOUCHOULE, S., C.KAZMIERSKI, D. MATHOORASIN, A. OUGAZZADEN, et J.-Y. MARZIN, (1997), IEEE J. of Selected Topics in Quantum Electronics, vol. **3** (2), p.330.

59. ZHU, D. X., S. DUBOVITSKY, W. H. STEIER, J. BURGER, D. TISHININ, K. UPPAL, et P. DANIEL DAPKUS, (1997), Appl. Phys. Lett., vol. **71**, 647.

60. RALSTON, J. D., S. WEISSER, K. EISELE, R. E. SAH, E. C. LARKINS, J. ROSENZWEIG, J. FLEISSNER, et K. BENDER, (1994), IEEE Photon. Technol. Lett., vol. **6** (9), 1076.

61. BELENKY, G. L., C. L. REYNOLDS, R. F. KAZARINOV, V. SWAMINATHAN, S. L. LURYI, et J. LOPATA, (1996), IEEE J. Quantum Electronics, vol. **32** (8), p.1450.

62. LAU, K. Y. (1993), "Dynamics of Quantum Well Lasers" dans Quantum Well Lasers, édité par P. S. Zory, Academic Press, Orlando, FL, xvii 554 p

63. DEVAUD, B., D. MORRIS, A. REGRENY, M. R. X. BARROS, P. BECKER, et G. M. GÉRARD, (1994), Optical and Quantum Electronics, vol. **26**, p. S679.

64. LO, Y. C., Y. HSIEH, et R. M. KOLBAS, (1988), Appl. Phys. Lett. vol. **52**, p. 1853.

65. KERSTING, R., R. SCHWEDLER, K. WOLTER, K. LEO, et H. KURZ, (1992), Phys. Rev. B, vol. **64**, p. 1639.

66. BRUM, J. A., et G. BASTARD, (1986), Phys. Rev. B, vol. **33**, p. 1420.

67. PREISEL, M., (1994), "Carrier Capture and Carrier Kinetics in Biased Quantum Well Devices ", Thèse de Doctorat, Copenhagen, Niels Bohr Institute, viii-110 p.

68. OE, K., Y. SHINODA, et K. SUGIYAMA, (1978), Appl. Phys. Lett., vol. **33**, 962.

69. CORZINE, S. W., R. YAN et L. A. COLDREN, (1992), dans "Quantum Well Lasers", édité par P. S. Zory, San Diago, Academic Press.

70. SCHMITT, S., D. S. CHEMLA, et H. HAUG, (1988), Phys. Rev. **B 37**, 941.

71. BALSLEV, I. et A. STAHL, (1988), Opt. Comm., vol. **65**, 137.

72. BALSLEV, I., R. ZIMMERMANN et A. STAHL, (1989), Phys. Rev. **B 40**, 4095.

73. KOGAN, SH. M., (1963), Sov. Phys. Solid State, vol. **4**, 1813.

74. CONWELL, E. M., (1967), dans "Solid State Physics", supplément 9, édité par F. Seitz, D. Turnbull, et H. Ehrenreich, Academic Press, New York.

75. BAUER, G., et H. KAHLER, (1972), Phys. Rev. **B5**, 566.

76. RYAN, J. F., R. A. TAYLOR, A. J. TURBERFIELD, A. MACIEL, J. M. WORLOK, A. C. GOSSARD, et W. WIEGMANN, (1984), Phys. Rev. Lett, vol. **53**, 1841.

77. SHANK, C. V., R. L. FORK, R. YEN, J. SHAH, B. I. GREENE, et C. WEISBUCH, (1983), Solid State Commun. Vol. **47**, 981.

78. RIDLEY, B. K., (1982), dans "Quantum Processes in Semiconductors",(Oxford, Clarendon), p. 677.

79. RIDDOCH, F. A., et B. K. RIDLEY, (1983), J. Phys. C : Solid State Phys. vol. **16**, 6971.

80. RIDDOCH, F. A., et B. K. RIDLEY, (1985), Physica B, vol. **134**, 342.

81. FERRY, D. K., (1978), Surf. Sc., vol. **75**, 86.

82. HESS, K., (1979), Appl. Phys. Lett., vol. **35**, 484.

83. PRICE, P. J., (1981), Ann. of Phys., vol. **133**, 217.

84. LEBURTON, J. P., (1984), J. Appl. Phys., vol. **56**, 2850.

85. YOFFA, E. J., (1981), Phys. Rev. **B 23**, 1909.

86. POTZ, W., et P. KOCEVAR, (1983), Phys. Rev. **B 28**, 7040.

87. COLLET, J., A. CORNET, M. PUGNET et T. AMAND, (1982), Solid State Commun., vol. **42**, 883.

88. PRICE, P. J., (1985), Physica **B 134**, 164.

89. CAI, W., M. C. MARCHETTI, et M. LAX, (1986), Phys. Rev. **B 34**, 8573.

90. LU, H. C. BAAUW, B. BENYON, G. P. LI, et T. MAKINO, (1995), "High-power and High-speed Performance of 1.3 μm Strained MQW Gain-coupled DFB Lasers", *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. **1**, n° 2, p. 375-381.

91. LU, H., T. MAKINO, et G. P. LI, (1995), "Dynamic Properties of Partly Gain-coupled 1.55 μm DFB Lasers", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. **31**, n° 8, p. 1443.

92. LI, G. P., T. MAKINO, R. MOORE, N. PUETZ, K.-W ., LEONG et H. LU, (1993), "Partly Gain-coupled 1.55 μm Strained Layers Multiquantum-well DFB Lasers", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. **29**, n° 6, p. 1736.

93. MAKINO, T. et H. LU, (1994), "Wide Temperature-range Single-mode Operation of MQW Gain-coupled DFB lasers", *Electronics Letters*, vol. **30**, n° 23, p. 1948

94. SHEN, Y. R. (1984), "The Principles of Nonlinear Optics" New York, Wiley, p. 563.

95. SHAH, J. (1988), dans "Ultrafast Luminescence Spectroscopy Using Sum Frequency Generation", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. **24**, n° 2, p. 276.

96. NASH, J. G. BERGMAN, G. D. BOYD, et E. H. TURNER, (1969), dans "Optical Nonlinearities", J. Appl. Phys., vol. **40**, p. 5201.

97. HALBOUT, J. M., S. BLIT, W. DONALDSON, et C. L. TANG, (1979), in "Efficient Phase-matched Second Harmonic Generation and Sum-frequency Mixing in Urea", IEEE J. Quantum Electron., vol **QE-15**, p. 1176.

98. KATO, K., (1986), in" Second Harmonic Generation to 2048 Å in βBaB_2O_4", IEEE J. Quantum Electron., vol **QE-22**, p. 1013.

99. ZERNIKE, F., et J. E. MIDWINTER, (1973), dans "Applied Nonlinear Optics", New York, Wiley, p 1717.

100. WIE, C. R., (1994), "High Resolution X-ray Diffraction Characterization of Semiconductor Structures", *Mater. Sci. Eng. Reports*, **R13**, n°1, p. 1-56

101. FEWSTER, P. F., (1993), "X-ray Diffraction from Low-dimentional Structures", *Semicond. Sci. Tech.* **8**, p. 1915.

102. BARTELS, W. J., (1983), "Characterization of Thin Layers on Perfect Crystal with a Multipurpose High Resolution X-ray Diffractometer", *J. Vac. Sci. Tech.* **B1** (2) p. 338.

103. REJEB, C., R. MACIEJKO, R. LÉONELLI, et D. MORRIS, (2000), dans "Optical properties of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ Multiple Quantum Wells Heterostructure Lasers", International Conference on the Application of Photonic Technology, ville de Québec, (Québec), Canada, du 12 au 16 juin, 2000. Accepté pour publication dans Proceedings of the SPIE, The International Society of Optical Engineering, article # L.N.5.1.10.

104. GAL, M. P. KUO, B. LEE, R. RANGANATHAN, P. C. TAYLOR et G. B. SPRINGFELLOW, (1986), Phys. Rev. **B 34**, 1356.

105. BASTARD, G., E. E. MENDEZ, L. CHANG, et L. ESAKI, (1982), Phys. Rev. **B 26**, 1974.

106. VAN DRIEL, H. M., X.-Q. ZHOU, W. W. RUHLE, et K. PLOOG, (1992) "*Photoluminscence from Hot Carriers in Low-temperature-grown Gallium Arsenide*", Appl. Phys. Lett., vol. **60** (18), p. 2246.

107. REIHLEN, E. H., A. PERSSON, T. Y. WANG, K. L. FRY, et G. B. SPRINGFELLOW, (1989),"*Photoluminsence Study of Carrier Collection and Recombination in GaInAs/InP Single quantum Wells*" Jou. Appl. Phys., vol. **66** (11), p. 5554.

108. ZOU, Y., J. S. OSINSKY, P. GRODZINSKI, P.D. DAPKUS, W. C. RIDEOUT, W. F. SHARFIN, J. SCHLAFER, et F. D. CRAWFORD, (1993), IEEE J. Quantum Electron., vol. **29**, n 6, p. 1565.

109. SHAH, J. and C. C. LEITE, (1969), Phys. Rev. Lett., vol. **22** (24), 1304.

110. ULBRICH, R. G., (1973), Phys. Rev. **B 8**, 5719.

111. SHAH, J., (1974), Phys. Rev. **B 10**, 3697.

112. SHAH, J., (1978), Solid State Electronics, vol. **21**, 43.

113. SHAH, J., R. F. LEHENY, R. E. NAHORY, and M. A. POLLAK, (1980), Appl. Phys. Lett., vol. **37** (5), 475.

114. JUNG, H., A. FISHER et K. PLOOG, (1984), Appl. Phys. **A 33**, p. 97.

115. PEPOLE, R., K. W. WECHT, K. ALAVI, et A. Y. CHO, (1983), Appl. Phys. Lett. **43**, p. 118.

116. CHRISTEN , J. et D. BIMBERG, (1990), Phys. Rev. **B 42** (11), 7213.

117. SUGAWARA, M, T. FUJII, M. KONDO, K. KATO, K. DOMEN, S. YAMAZAKI, et K. NAKAJIMA, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **53** (23) 2290.

118. WELCH, D. F., G. W. WICKS, et L.F. EASTMAN, (1985), Appl. Phys. Lett., vol. **46**, 991.

119. DOTOR, M. L., M. RECCIO, D. GOLMAYO, et F. BRIONES, (1992), J. Appl. Phys., vol. **72**,, p. 5861.

120. OLSHANSKY, R., J. LACOURSE, T. CHOW et W. POWAZINIK, (1987), Appl. Phys. Lett., vol. **50**, p. 310.

121. AGRAWAL, G. P. et N. K. DUTTA, (1986), "*Long-Wavelength Semiconductors Lasers*", New York, Van Nostrand Reinhold, xiii-473 p.

122. BEBB, H. B., et E. W. WILLIAMS, (1972), "Photoluminescence I: Theory", dans Transport and optical Phenomena, sous la direction de R. K. Willardson et A. C. Beer, vol. 8 de Semiconductors & Semimetals, New York, Academic Press, P. 181-320.

123. MARCINKEVICIUS, S., O. OLIN et G. TREIDIRIS, (1993), J. Appl. Phys., vol. **74**, n° 2, p. 3587.

124. VARSHNI, Y. P., (1967), Physica (Amsterdam), vol **34**, 149.

125. ADACHI, S., (1991), dans "*Properties of Indium Phosphide*", INSPEC.

126. TEMKIN, H., D. GERSHONI, et M. B. PANISH, (1994), dans "*Epitaxial Microstructures* ", édité par A. C. Gossard, Academic, New York, xiv-344 p.

127. FRANCESIO, L., P. FRANZOSI, M. CALDIRONI, L. VITAL, M. DELLANGIOVANNA, A. DiPAOLA, F. VIDIMARI, et S. PELLEGRINO, (1996), IL Nuovo Cimento, vol. **18 D**, n° 8, p. 975.

128. FOUQUET, J. E., V. M. ROBBINS, J. ROSNER, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **57**, n° 15, p. 1566.

129. NOBUYUKI, O., K. MASAHIRO, Y. YASUFUMI, I. MASATO, et M. YASUSHI, (1996), J. electron. Mat., vol. **25**, n° 4, p. 701.

130. DeLONG, M. C., D. J. MOWBARY, R. A. HOGG, M. HOPKINSON, J. P. R. DAVID, P. C. TAYLOR, R. KUTZ SARAH, et J. M. OLSON, (1993), J. Appl. Phys., vol. **73**, n° 10, p. 5163.

131. NOBUYUKI, O., K. MASAHIRO, Y. YASUFUMI, I. MASATO, et M. YASUSHI, (1997), J. of Crystal Growth, vol. **170**, p-626.

132. LUDWISE, M. J., D. BISWAS, et P. K. BHATTACHARYA, (1990), Appl. Phys. Lett. **56**, p. 958.

133. FOUQUET, J. E., M. S. MINSKY et S. J. ROSNER, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **63**, n° 23, p. 3212.

134. ZHAO, Y. G., R. A. MASUT, J. L. BREBNER, C. A. TRAN, et G. T. GRAHAM, (1994), J. Appl. Phys., vol. **76**, 5921.

135. OTSUKA, N., M. KITO, Y. YABUUCI, M. ISHINO, et Y. MATSUI, (1995), in : *Proc. 7th Int. Conf. Of Indium Phosphide and Related Materials*, Hokkaido University, Hokkaido, Japan, p. 701.

136. JIANG, X. S., et P. K. L. YU, (1994), Appl. Phys. Lett., vol **65**, 2536.

137. DRIESSEN, F. A. J. M., G. J. BAUHUIS, S. M. OLSTHOORN, et L. J. GILING, (1993), Phys. Rev. **B 48**, 7889.

138. SU, L. C., S. T. PU, et G. B. STRINGFELLOW, (1994), J. Electron. Mater., vol. **23**, 125.

139. SINGH, J., (1986), IEEE Electron. Device Lett., vol. **EDL-7**, n° 7, p. 436.

140. WEI, S.-H et A. ZUNGER, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, n° 7, p. 662.

141. WEI, S.-H et A. ZUNGER, (1994), Appl. Phys. Lett., vol. **64**, n° 6, p. 757.

142. PHILIPS, B. A., A. G. NORMAN, T. Y. SEONG, S. MAHAJAN, G. R. BOOKER, M. SKOWRONSKI, J. P. HARBISON, et V. G. KERAMIDAS, (1994), J. of Crystal Growth, vol. **140**, p. 249.

143. GREENBERG, J. et L. F. EASTMAN, (1997), dans "A Novel Structure Incorporating Ordered $(InAs)_1(GaAs)_1$ Quantum Wells on GaAs(111)B for High Speed Long wavelength Lasers up to and Beyond 1.3 μm" 23rd Int. Symp. Compound Semiconductors, St Petersburg, Russia, 23-27 September 1996. Éditée par IOP Ltd, p. 561.

144. UEDA, O. (1997), dans "Materials Issues in III-V Alloy Semiconductors and their Influence on the Degradation of Optical Devices" Inst. Phys. Conf. Ser. n° 160, Édition IOP Ltd, p.457.

145. FISH, G. A., B. MASON, S. P. DENBAARS, et L. A. COLDREN, (1988), J. of Crystal Growth, vol. **186**, p. 1-7.

146. SUZUKI, T., A. GOMYO, et S. IIJIMA, (1988), J. Crystal. Growth, vol. **93**, 396.

147. SRIVASTAVA, G. P., J. L. MARTIN, et A. ZUNGER, (1985), Phys. Rev. **B**, vol. **31**, 2561.

148. MBAYE, A. A., A. ZUNGER, et D. M. WOOD, (1986), Appl. Phys. Lett., vol. **49**, 782.

149. ZUNGER, A. et D. M. WOOD, (1989), J. Crystal. Growth, vol. **98**, 1.

150. BERNARD, J. E., R. G. DANDREA, L. G. FERREIRA, S. FROYEN, S. H. WEI, et A. ZUNGER, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, 731.

151. MURGATROYD, I. J., A. G. NORMAND, et G. R. BOOKER, (1990), J. Appl. Phys. vol. **67**, n° 5, p. 2310.

152. CHU, S. N. G., S. NAKAHARA, K. E. STERGE, et W. D. JOHNSTON Jr, (1985), J. Appl. Phys., vol. **57**, n° 10, p. 4610.

153. NORMAN, A. G. et G.R. BOOKER, (1985), J. Appl. Phys., vol. **57**, n° 10, p. 4715.

154. DEPPE, D. G., L.J. GUIDO, N. HOLONYAK Jr, et K.C. HSIEH, (1986), Appl. Phys. Lett., vol. **49**, n° 9, p. 510.

155. IHM, Y.-E, N. OTSUKA, J. KLEM, et H. MORKOC, (1987), Appl. Phys. Lett., vol. **51**, n° 24, p. 2013.

156. PLANO, W. E., D. W. NAM, J. S. MAJOR Jr., K. C. HSIEH, et N. HOLONYAK Jr, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **53**, n° 25, p. 2537.

157. GOMYO, A., T. SZUKI, et S. IIJIMA, (1988), Phys. Rev. Lett., vol. **60**, n° 25, p. 2645.

158. SUZUKI, T., A. GOMYO, I. HINO, K. KOBAYASHI, S. KAWATA, et S. IIJIMA, (1988), Japn. J. Appl. Phys., vol. **27**, n° 8, p. L 1549.

159. KONDOW, M., H. KAKIBAYASHI, et S. MINAGAWA, (1988), J. Crystal. Growth, vol. **88**, 291-296.

160. KONDOW, M., S. YAMAZAKI, M. SUGAWARA, H. OKUDA, K. KATO, et K. NAKAJIMA, (1988), J. Crystal. Growth, vol. **93**, 376.

161. MAHAJAN, S., et M. A. SHAHID, (1989), dans "*Phase Separation and Atomic Ordering in Epitaxial Layers of III-V Compound Semiconductors*" Mat. Res. Soc. Symp. Proc. vol. **144**, p. 169.

162. UEDA, O., T. FUJII, Y. NAKADA, H. HAMADA, et I. IMEBU, (1989), J. Crystal. Growth,, vol. **95**, p. 38.

163. GOMYO, A., S. KAWATA, T. SUZUKI, S. IIJIMA, et I. HINO, (1989), Jpn. J. Appl. Phys., vol. **28**, n° 10, p. L 1728.

164. BAXTER, C. S., W. M. STOBBS, et I. H. WILKIE (1991), J. Crystal. Growth, vol. **112**, p. 373.

165. UEDA, O., Y. NAKATA, et T. FUJII, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **58**, n° 7, p. 705.

166. LEE, K., B. A. PHILIPS, R. S. McFADDEN, et S. MAHAJAN, (1995), Mat. Science and Engineering, **B32**, p. 231.

167. UEDA, O., Y. NAKATA, T. NAKAMURA, et T. FUJII, (1991), J. Crystal. Growth, vol. **115**, p. 375.

168. ZAKHAROV, N. D., Z. LILIENTAL-WEBER, W. SWIDER, J. WASHBURN, A. S, BROWN, et R. METZGER, (1993), J. Electron. Matter., vol. **22**, 1495.

169. MAHAJAN, S., (1995), Mat. Science and Engineering, **B30**, p. 187.

170. LAPIERRE, R. R., T. OKADA, B. J. ROBINSON, D. A. THOMPSON, et G. C. WEATHERLY, (1995), J. Crystal. Growth, vol. **155**, p. 1-15.

171. SUGIURA, H., M. OGASAWARA, M. MITSUHARA, M. ITOH, et Y. KONDO, (1998), J. Crystal. Growth, vol. **188**, p. 260.

172. SHAHID, M. A., S. MAHAJAN, D. E. LAUGHLIN, et H. M. COX, (1987), Phys. Rev. Lett., vol. **58**, 2567.

173. SHAHID, M. A., S. MAHAJAN, (1988), Phys. Rev. **B. 38**, 1344.

174. CHEN, G. S., D. H. JAW, et G. B. STRINGFELLOW, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **57**, 2475.

175. ARENT, D. J., M. BODE, K. A. BERTNESS, S. R. KURTZ et J. M. OLSON, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **62**, 1806.

176. DABKOWSKI, F. P., P. GAVRILOVIC, K. MEEHAN, W. STUTIUS, J. E. WILLIAMS, M. A. SHAHID, et S. MAHAJAN, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **52**, 2142.

177. VAN GURP, G. J., W. M. VAN De WIJGERT, G. M. FONTIJN, et P. J. A. THIJS, (1990), J. Appl. Phys. vol. **67**, n° 6, p. 2919.

178. SUZAKI, S., K. R. GOPALRAO, T. SEKIGUSHI, T. AIZAWA, , et R. YAMAUSHI, (1993), Jpn. J. Appl. Phys., vol. **32**, p. L 408.

179. BOLKHOVITYANOV, Yu. B., A. M. GILINSKY, N. V. NOMEROTSKY, E. M. TRUKHANOV, et A. S. JAROSHEVICH, (1995), J. Crystal. Growth, vol. **149**, p. 17.

180. GOLDMAN, L. S., R. M. FEENSTRA, C. SILFVENIUS, B. STALACKE, et G. LANDGREN, (1997), J. Vac. Sci. Technol., vol. **B 15**, n° 4, p. 1027.

181. SILFVENIUS, C. et G. LANDGREN, (1998), J. Crystal. Growth, vol. **195**, p. 700.

182. JOCHUM, S., E. KUPHAL, V. PIATAEV, et H. BURKHARD, (1998), J. Crystal. Growth, vol. **195**, p. 637.

183. SYRBU, A. V., J. BEHREND, J. FERNADEZ, J. F. CARLIN, C.-A. BERSETH, V. P. IAKOVLEV, A. RUDRA, et E. KAPON, (1998), J. Crystal. Growth, vol. **188**, p. 338.

184. McDERMOTT, B. T., K. G. REID, N. A. EL-MASRY, et S. M. BEDAIR, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, n° 12, p. 1172.

185. GENG, C., M. MOSER, R. WINTERHOFF, E. LUX, J. HOMMEL, B. HOHING, H. SCHWEIZER, et F. SCHOLZ, (1994), J. Crystal. Growth, vol. **145**, p. 740.

186. KONDOW, M., S. MINAGAWA, Y. Y. INOUC, T. NISHINO, et Y. HAMAKAWA, (1989), Appl. Phys. Lett. vol. **54**, 1760.

187. WILLIAMS, E. W., A. ASHFORD, P. PORTEOUS, et A. M. WHITE, (1970), Solid State Commun., vol. **8**, p. 501.

188. GURIOLI, M., A. VINATTIERI, M. COLOCCI, C. DEPARIS, J. MASSIES, G. NEU, A. BOSACCHI, et S. FRANCHI, (1991), Phys. Rev. B vol. **44**, p. 3115.

189. LEONELLI, R., C. A. TRAN, J. L. BREBNER, J. T. GRAHAM, R. TABTI, R. A. MASUT, et S. CHARBONNEAU, (1993), Phys. Rev. B vol. **48**, n° 15, p. 11135.

190. FELDMAN, J., G. PETER, E. O. GÖBEL, P. DAWSON, K. MOORE, C. FOXON, et R. J. ELLIOTT, (1987), Phys. Rev. Lett., vol. **59**, p. 2337.

191. CEBULLA, U. G. BAHER, et A. FORSHEL, (1989), Appl. Phys. Lett, vol. **55**, n °10, p. 933.

192. ADACHI, S., (1992), in "Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds" Wiley, New York, p. 235.

193. DEVEAUD, B., J. SHAH, T. C. DAMEN, B. LAMBERT et A. REGRENY. (1987), "Bloch transport of electrons and holes in superlattice minibands: direct measurement by subpicosecond luminescence spectroscopy", Phys. Rev. Lett., vol. **58**, 2582.

194. FOREST, S. R., P. H. SCHMIDT, R. B. WILSON, et M. L. KAPLAN, (1984), Appl. Phys. Lett, vol. **45**, 1199.

195. GÜÇLU, A. D., C. REJEB, R. MACIEJKO, D. MORRIS, et A. CHAMPAGNE, (1999), J. Appl. Phys., vol. **86**, n° 6, p. 3391.

196. ASCH, A. E. et G. L. HALL, (1963), Phys. Rev. **132**, 1047.

197. MARTINEZ-PASTOR, J., A. VINATTIERI, L. CARRARESI, M. COLOCCI, Ph. ROUSSIGNOL, et G. WEIMANN, (1993), Phys. Rev. **B 47**, 10456.

198. WESTLAND, D. J., D. MIHAILOVIC, J. F. RYAN, et M. D. SCOTT, (1987), Appl. Phys. Lett, vol. **51**, 590.

199. WEISS, S., J. M. WIESENFELD, D. S. CHEMLA, G. RAYBON, G. SUCHA, M. WEGENER, G. EISENSTEIN, C. A. BURRUS, A. G. DENTAI, U. KOREN, B. I. MILLER, H. TEMKIN, R. A. LOGAN, et T. TANBUN-EK, (1992), Appl. Phys. Lett., vol. **60**, 9.

200. BOCKELMANN, U., (1993),), Phys. Rev. **B 48**, 17637.

201. WANG, G., S. FAFARD, D. LEONARD, J. E. BOWERS, J. L. MERZ, et P. M. PETROFF, (1994), Appl. Phys. Lett., vol. **64**, n° 21, p. 2815.

202. CHOMETTE, A., B. DEVEAUD, A. REGRENY, et G. BASTARD, (1986), Phys. Rev. Lett, vol. **57**, 1464.

203. TUNCEL, E., L. PAVESI, D. MARTIN, et F. K. REINHART, (1988), Phys. Rev. **B 38**, 1597.

204. KERSTING, R., A. KOHL, T. VOSS, K. LEO et H. KURZ, (1992), Appl. Phys. **A55** (Solids and Surfaces), p. 596.

205. JAMES, L. W., J. P. VAN DYKE, F. HERMAN, et D. M. CHANG, (1970), Phys. Rev. **B 1**, 3998.

206. SHAH, J., B. DEVEAUD, T. C. DAMEN, W. T. TSANG, A. C. GOSSARS, et P. LUGLI, (1987), Phys. Rev. Lett., vol. **59**, 2222.

207. FURUTA, T. et A. YOSHII, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **59**, 3607.

208. HOHENESTER, U., P. SUPANCIC, P. KOCEVAR, X. Q. ZHOU, W. KUTT, et H. KURZ, (1993), Phys. Rev. **B 47**, 13233.

209. MOORADIAN, A., et H. Y. FAN, (1966), Phys. Rev, vol. **148**, 873.

210. ADAMS, A. R., (1991), in "*Properties of Indium Phosphide*" (INSPEC, EMIS, Datareviews, serie 6), p. 98.

211. REJEB, C., R. MACIEJKO, D. MORRIS, et T. MAKINO (1998), dans "Carrier Dynamics in $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ Multiple Quantum Wells Lasers Structures", International Conference on the Application of Photonic Technology, ville d'Ottawa (Ontario), Canada, juin 1998. Proceedings of the SPIE, The International Society of Optical Engineering, vol. 3491, p. 1065.

212. HENRY, C. H. (1982), IEEE J. Quantum Electron., vol, **18**, p. 259.

213. GHITI, A., E. P. O'REILLY et A. R. ADAMS, (1989), Electron. Lett., vol. **25**, p. 821.

214. LAU, K. Y., S. XIN, W. I. WANG, N. BAR-CHAIM, et M. MITTELSTEIN, (1989), Appl. Phys. Lett., vol. **55**, p. 1173.

215. OHTOSHI, T. et N. CHINONE, (1989), IEEE Photon. Technol. Lett., vol. 1, p. 117.

216. UOMI, K., (1990), Jpn. J. Appl,. Phys., vol. **29**, p. 81.

217. QUILLEC, M., L. GOLDSTEIN, G. LEROUX, J. BURGEAT, et J. PRIMOT, (1984), J. Appl. Phys. vol. **55**, p. 2904.

218. KROST, A., G. BAUER et J. WOITOK, 1996, "High resolution X-Ray Diffraction", dans Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers, sous la direction de G. Bauer et W. Richter, New York, Springer, p.287.

219. RYAN, T. (1991), "Characterization of Compound Semiconductors by HRXRD", dans Material Research Society Short Course **C-23**, p. 1.

220. HALLIWELL, M. A. G., (1994), Appl. Phys. **A58**, p. 135.

221. MACRANDER, A. T. , S. LAU, K. STERGE et S. N. G. CHU, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **52**, p. 1985.

222. FEWSTER, P. F. et C. J. CURLING, (1987), J. Appl. Phys. vol. **62**, p. 4154.

223. FEWSTER, P. F, (1986), Philips J. Res., vol. **41**, p. 268.

224. POWEL, A., R. KUBIAC, E. PARKER, K. BOWEN et M. POLCAROVA, (1991), Matter. Res. Symp. Proc, Anaheim, p.117.

225. HALLIWELL, M. A. J., M. H. LYONS, et M. J. HILL, 1984, J. Crystal Growth, vol. **68**, p. 523.

226. WIE, C. R., T. R. TOMBRELLO rt T. VREELAND, (1986), J. Appl. Phys., vol. **59**, p. 3743.

227. PAINE, B. M. et V. P. SPERIOUS, (1987), J. Appl. Phys., vol. **62**, p. 1704.

228. BENSOUSSAN, S., C. MALGRANGE, et M. SAUVAGE-SIMKIN, (1987), J. Appl. Cryst., vol. **20**, p. 222.

229. MACRANDER, A. T. et S. E. G. SLUSKY, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **56**, p. 443.

230. KERVAREC, J., M. BAUDET, J. CAULET, P. AUVREY, J. Y. EMERY, et A. REGRENY, 1984, J. Appl. Crystallogr., vol. **17**, p. 196.

231. FEWSTER, P. F., (1997), dans "Thin Film Growth Techniques for Low Dimentional Structures" sous la direction de R. F. , Farrow et al. (New York, Plenum), p. 417.

232. ADACHI, S., (1982), dans "Materail Prameters of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ and Related Binaries", J. Appl. Phys., vol. **53**, n 12, p 8775.

233. MATTHEWS, J. W., et A. E. BLAKESLEE, (1974), J. Crystal Growth, vol. **27**, p. 118.

234. HALLIWELL, M. A. J., M. H. LYONS, S.T. DAVEY, M. HOKLY, C. G. TUPPEN, et C. J. GIBBINGS, (1989), Semicond. Sci. Technol., vol. **4**, p. 10.

235. KURIMOTO, T. et N. HAMADA, (1989), Phys. Rev. **B**, **40**, p. 3889.

236. MASCARENHAS, A. et J. M. OLSON, (1990), Phys. Rev. **B**, **41**, p. 9947.

237. UENO, Y., (19993), Appl. Phys. Lett., vol. **62**, p. 553.

238. CHU, S. N. G., R. A. LOGAN et TANBUN-EK, (1994), J. Appl. Phys., vol. **72**, p. 4118.

239. LEGOUES, F. K., V. P. KESAN, S. S. LYER, J. TERSOFF et R. TROPM, (1990), Phys. Rev. Lett., vol. **64**, p. 2038.

240. CHADI, D. J., (1987), J. Vac. Sci. Technol., vol. **A5**, p. 834.

241. LIU, Q., H. LAKNER, F. SCHEFFER, A. LINDER et W. PROST, (1993), J. Appl. Phys., vol. **73**, n° 6, p. 2770.

242. FROYEN, S. et A. ZUNGER, (1991), Phys. Rev. Lett., vol. **66**, p. 2132.

243. OSORIO, R., J. E. BERNARD, S. FROYEN et A. ZUNGER, (1992), Phys. Rev. **B** **45**, p. 11173.

244. BELLON, P., J.-P. CHEVALIER, E. AUGARDE, J.-P. ANDRÉ et G. P. MARTIN, (1989), J. Appl. Phys. vol. **66**, p. 2388.

245. BOGUSLAWSKI, P., (1990), Phys,. Rev. **B 42**, p. 3737.

246. OGALE, S. B. et A. MADHUKAR, (1991), Appl. Phys. Lett., vol. **59**, p. 1356.

247. OGALE, S. B. et A. MADHUKAR, (1992), Appl. Phys. Lett., vol. **60**, p. 2095.

248. DeLONG, M. C., P. C. TAYLOR et J. M. OLSON, (1990), J. Vac. Sci. Technol., vol. **57**, p. 620.

249. DeLONG, M. C., P. C. TAYLOR et J. M. OLSON, (1990), Appl. Phys. Lett., vol. **B8**, p. 948.

250. DeLONG, M. C., W. D. OHLSEN, I. VIOHL, P. C. TAYLOR et J. M. OLSON, (1991), J. Appl. Phys., vol. **70**, p. 2780.

251. CHANG, L. B., K. Y. CHENG, et C. C. LIU, (1988), Jpn. J. Appl. Phys., vol. **27**, 1145.

252. AÏT-OUALI, R. Y.-F YIP, J. L. BREBNER, et R. A. MASUT, (1998), J. Appl. Phys., vol. **83**, n 6, p.3153.

253. MODELUNG, O., (1996), dans "*Semiconductors, Basic Data*", Springer, Berlin.

254. MODELUNG, O., (1982), dans "*Physics of Group IV Elements and III-V Compunds*", Landolt-Börnstein. New Series, Group III, vol. **17**, subvol. A, Springer, Berlin; xxiv, 422 p.

255. REJEB, C., (1993), dans "Contribution à la caractérisation des effets d'une irradiation aux électrons sur les propriétés optiques et de transport électrique du GaAs" Mémoire de Maîtrise (M. Sc.), p. 70 et 77, Université de Sherbrooke (Québec), Canada.

256. CARLONE, C.; C. REJEB, A. JORIO, M. PARENTEAU, S. M. KHANNA, (1994), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **B 90**, no.1-4, p. 405.

257. KHANNA, S. M., C. REJEB, A. JORIO, M. PARENTEAU, et C. CARLONE, (1993), IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.**40**, no.6, pt.1, p. 1350.

258. JORIO, A., C. REJEB, M. PARENTEAU, C. CARLONE, et S. M. KHANNA, (1993), Journal of Applied Physics, vol.**74**, no.4, p. 2310.

259. SKOLNICK, M., P. R. TAPSTER, S. J. BASS, A. D. PITT, N. APSLEY, et S. P. ALDRED, (1986), Semicond. Sci. Technol., vol. **1**, p. 29.

260. SKOLNICK, M., P. R. TAPSTER, S. J. BASS, N. APSLEY, A. D. PITT, N. G. CHEW, S. P. ALDRED, et C. R. WARWICK, (1986), Appl. Phys. Lett., vol. **48**, p. 1455.

261. WHITE, A. M., P. J. DEAN, D. J., ASHEN, J. B. MULLIN, M. WEBB, B. DAY, et P. D. GREEN, (1973), J. Phys. C: Solid State Phys. vol. **6**, p. L243.

262. ASHEN, D. J., P. J. DEAN, D. T. J. HURLE, J. B. MULLIN, A. M. WHITE, (1975), J. Phys.& Chem. Solids, vol. **36**, p. 1041.

263. GERHAD, T., W. FASCHINGER et G. LANWEHR, (1998), Semiconductor. Science and Technology, vol. **13**, n 6, p. 583.

264. SU, C. B. and V. LANZISERA, (1984), Appl. Phys. Lett., vol. **45**, 1302.

265. CHENG, W.-Hi, K.-DIETER BUEHRING, A. APPELBAUM, D. RENNER, S. SHIN, C. B. SU, A. MAR, and J. E. BOWERS, (1991), IEEE J. Quantum. Electron., vol. **27** (6), p.1642.

266. AMAND, T., J. BARRAU, X. MARIE, N. LAURET, B. DAREYS, and M. BROUSSEAU, (1993), Phys. Rev. **B 47**, p. 7155.

267. EVANS, P. A., P. BLOOD, and J. S. ROBERTS, (1994), Semicond. Sci. Technol., vol. **9**, p. 1740.

268. FROJDH, K., S. MARCINKIVISIUS, O. OLIN, C. SILFVENIUS, B. STALNACKE, and G. LANDGREN, (1996), Appl. Phys. Lett., vol. **69**, p. 3695.

269. TESSLER, N., S. MARCINKIVISIUS, O. OLIN, and C. SILFVENIUS, (1997), IEEE J. Selected Topics of Quantum Electronics, vol. **3**, p. 315.

270. REJEB, C., (2000), Thèse de Ph. D., "Contribution à l'étude de la dynamique ultra-rapide des porteurs dans des hétérostructures lasers à puits quantiques multiples d'InGaAsP", École Polytechnique de Montréal, (Québec), Canada.

271. NAMEGAYA, T., N. NATSUMOTO, N. YAMANAKA, N. IWAI, H. NAKAYAMA, and A. KASUKAWA, (1994), IEEE. J. Quantum Electron., vol. **30**, p. 578.

272. TAKEGUSHI, T., K. GOTO, M. TAKEMI, A. TAKEMOTO, T. AOYAGI, H. WATANABE, Y. MIHACHI, S. TAKAMIYA, and S. MITSUI, (1994), J. Crystal Growth, vol. **145**, p. 892.

273. BOWERS, J. E., (1987), Solid-State Electron., vol. **30**, p.1.

274. SHICHIJO, H., R. M. KOLBAS, N. HOLONYAK Jr., R. D. DUPUIS, et P. D. DAPKUS, (1978), Solid State Commun., vol. **27**, p.1029.

275. TANG, Y., K. HESS, N. HOLONYAK Jr, J. COLEMAN, et P. D. DAPKUS, (1982), J. Appl. Phys., vol. **53**, p. 6043.

276. KOZYREV, S. V. et A. Y. SHIK, (1986), Sov. Phys. Semicond., vol. **19**, p. 1024.

277. FELDMAN, J., G. PETER, E. O. GOBEL, K. LEO, H. J. POLLANK, K. PLOOG, K. FUJIWARA, et T. NAKAYAMA, (1987), Appl. Phys. Lett., vol. **51**, p. 226.

278. DEVEAUD, B., J. SHAH, T. C. DAMEN, et W. T. TSANG, (1988), Appl. Phys. Lett., vol. **52**, p.1886.

279. KERSTING, R., R. SCHWELDER, A. KOHL, K. LEO, et H. KURZ, (1994), Opt. Quantum Electron., vol. **26**, p. 705.

280. BLOM, W. M., C. SMIT, J. E. M. HAVERKORT, et J. H. WOLTER, (1993), Phys. Rev. **B 47**, p. 2072.

281. MORRIS, D., B. DEVEAUD, A. REGRENY, et P. AUVRAY, (1993), Phys. Rev. **B 47**, p. 6819.

282. GOODNICK, S. M. et P. LUGLI, (1988), Phys. Rev. **B 37**, p. 2578.

283. STANTON, C. J., D. W. BAILEY, et K. HESS, (1988), IEEE J. Quantum Electron., vol. **24**, p. 1614.

284. LAM, Y. et J. SINGH, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **63**, p. 1874.

285. ABOU-KHALIL, M., M. GOANO, A. CHAMPAGNE, et R. MACIEJKO, (1996), IEEE Photonics, Technol. Lett., vol. **8**, p. 19.

286. ABOU-KHALIL, M., M. GOANO, A. CHAMPAGNE, et R. MACIEJKO, (1997), J. Appl. Phys., vol. **81**, p. 6438.

287. GOANO, M., M. ABOU-KHALIL, et R. MACIEJKO, (1995), Electron. Lett., vol. **31**, p. 1516.

288. HOCKNEY, R. W. et J. W. EASTWOOD, (1988), dans "*Computer Simulation Using Particles*", Hilger, Bristol. xxiii, 417 p.

289. OSMAN, M. A. et D. K. FERRY, (1987), Phys. Rev. **B 36**, p. 6018.

290. SINGH, J. (1993), dans "*Physics of Semiconductors and their Heterostructures*", Electrical and Computer Engineering Series (McGraw-Hill, New York), xvi, 217 p.

291. OLSHANSKY, R., C. B. SU, J. MANNING, et W. POWAZINIK, (1984), IEEE J. Quantum Electron., vol. **20**, p. 838.

292. WINTER, E. et E. P. IPPEN, (1984), Appl. Phys. Lett., vol. **44**, p. 999.

293. FUCHS, G., C. SCHIEDEL, A. HANGLEITER, V. HARLE, et F. SCHOLZ, (1993), Appl. Phys. Lett., vol. **62**, p. 396.

294. WANG, J., P. V. ALLMEN, J. P. LEBURTON, et K. J. LINDEN, (1995), IEEE J. Quantum Electron., vol. **31**, p. 864.

295. AGRAWAL, G. P. et N. K. DUTTA, (1993), dans "*Semiconductor Lasers*", Van Nostrand Reinhold, New York, xxiv 523 p.

296. ZHOU, X. Q., K. LEO, et H. KURZ, (1992), Phys. Rev. **B 45**, p. 3886.

297. HIRAYAMA, H., J. YOSHIDA, Y. MIYAKE, et M. ASADA, (1994), IEEE J. Quantum Electron. **QE-30**, p. 54.

298. PETRAUSKAS, M., S. JUODKAZIS, V. NETIKIS, M. WILLANDER, A. OUACHA, et B. HAMMARLAND, (1992), Semicond. Sc. Technol., vol. 7, p. 1355.

299. VAITKUS, J., S. JUODKAZIS, M. PETRAUSKAS, et M. WILLANDER, (1994), dans "Characterization of Layered InGaAsP/InP Structures by Means of Time Resolved Transient Grating Technique" Inst. Phys. Conf. Ser. N 141, Chapter 3, ou Int. Symp. Compound Semicond., San Diago, (1994), p. 18.

ANNEXE A

Optical Properties of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ Multiple Quantum Wells Heterostructures Lasers

C. Rejeb[1,*], R. Maciejko[1], R. Léonelli[2] and D. Morris[3]

[1] Optoelectronics Laboratory, Department of Engineering Physics, École Polytechnique, P.O. Box 6079, Succ. "Centre-ville", Montreal (Québec), Canada H3C 3A7.

[2] Groupe de Recherches en Physique et Technologie des Couches Minces (GCM), Département de Physique, Université de Montréal, C. P. 6128, Succ "Centre-ville", Montreal (Qué), Canada H3C 3J7.

[3] Centre de Recherches sur les propriétés électroniques de matériaux avancés, Département de Physique, Université de Sherbrooke, Sherbrooke (Québec), Canada J1K 2R1.

Article accepté pour publication dans Proceedings of the SPIE, The International Society for Optical Engineering, (Paper # L.N.5.1.10) International Conference on the Application of Photonic Technology, Quebec City (Quebec) Canada, June 12 to 16, 2000. Editor(s): Lampropoulos, George A.; Lessard, Roger A.

---

* Present address : Nortel Networks, 1285 Baseline Rd, P.O. Box 04577C04, Ottawa (Ontario). Canada K2C 0A7.

Abstract

Understanding the physics of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ multiple quantum well (MQW) nanostructures is essential for the development of new photonic devices such as lasers, amplifiers and modulators. In this work, optical and structural properties as well as vertical transport of three different heterostructures grown by metalorganic vapor phase epitaxy and emitting at 1.33 μm and 1.55 μm have been studied using continuous wave and time-resolved photoluminescence (cw-PL and TRPL) and high resolution x-ray diffraction (HRXRD). Cw-PL measurements show an anomalous PL characteristics for the structure with a thicker active layer which is discussed in terms of electron-acceptor transitions, donor-acceptor pairs, and constraint relaxation and related structural defects. The overall observed red shift with increasing temperature is interpreted as resulting from two opposite and competitive processes: band-gap shrinkage (dominant) and blue shift caused by fluctuations in the QW layer thickness across the lateral sample direction. In the observed full width at half maximum, we identified a component of ~ 8 meV as a contribution from longitudinal optical phonons. At high excitation densities, it is shown that carrier spillover and Auger recombination may be the major mechanisms limiting the quantum efficiency. For TRPL measurements, carrier cooling rates are discussed in terms of concurrent and opposite scattering mechanisms. It is found that the rise times of the QWs and the confinement region increase slightly (~2 ps) on decreasing the excitation

wavelength. The observed difference is attributed to a higher initial carrier temperature associated with the shorter excitation wavelength. Comparable times of ~ 4 ps are observed for the carrier transport and relaxation time within the confinement region and the carrier capture time in the quantum wells.

Keywords: Multiple-quantum-well lasers, $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$, time resolved photoluminescence, ultrafast carrier dynamics, vertical carrier transport, carrier capture, Γ-L transfer, photoluminescence, high resolution x-ray diffraction, atomic ordering, quantum efficiency.

1. Introduction

Quaternary $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ multiple quantum well (MQW) based devices are more and more used for optical fiber communications systems, because they operate at the wavelengths of zero-dispersion (1.3 μm) or lowest loss (1.55 μm) of silica optical fibers. However, optical fibers have a large bandwidth that is underutilized in today's installations. To remedy the situation, one witnesses a sustained effort in improving the high-speed performance of semiconductor lasers and amplifiers based on these materials. The relaxation oscillation frequency is given by $f_r = \frac{1}{2\pi}\sqrt{v_g(\partial g/\partial n)S(1/\tau_p)}$, where v_g is the group velocity in the cavity, $(\partial g/\partial n)$ is the differential gain, S is the photon density, and τ_p is the photon lifetime [6-13]. When roll-off effect is neglected, the maximum modulation bandwidth in semiconductor lasers is given by $f_{max} = 2^{3/2}\pi/K$, where the K factor is defined as $K = \gamma/f_r^2$ and where γ is the laser-damping factor [14]. High-speed laser design meant designing lasers with short cavity length for shorter

photon lifetimes, tight optical mode confinement for higher photon densities, and quantum well active layers which could be strained [5, 15, 53-59] and/or p-doped [60, 61, 264, 265] for higher differential gain.

Optimistic theoretical estimations predicted an achievable 60-90 GHz modulation bandwidth [5, 62]. Recently however, a record modulation bandwidth of 33 GHz have been demonstrated for p-doped InGaAs/GaAs MQW ridge-waveguide laser [60]. It is obvious that under direct modulation at high frequency, the laser should translate as fast and precisely as possible the temporal variation of the modulation into a corresponding intensity variation of its emitted light. Thus, in MQW laser structures, the highest attainable bit rates depend on carrier dynamics.

Various tricks have been used to get better insight in the understanding of carriers dynamics in semiconductor laser heterostructures (superlattices or MQWs). An enlarged QW was inserted inside or at the end of a superlattice structure to detect the arrival of carriers at the enlarged QW [62, 266, 267]. Very thin QWs with specified material compositions or well widths were inserted at spatial positions in heterostructures to play the role of spatial probe layers by emitting a characteristic PL signal [268-269]. Among the processes that may set the ultimate limitation to f_{max}, we find : (a) the optical nonlinear gain coefficient which is attributed to various phenomena such as spectral hole burning [15-21], and cavity standing wave dielectric grating [22-24]; (b) carrier transport [20, 25-32], including carrier tunneling between wells [27], carrier capture and transfer

between wells and barriers [33-36]; (c) the dynamic carrier heating [37-40] caused by current injection [41], stimulated and spontaneous emission [19, 42, 43], free-carrier absorption [42-44], two-photon absorption [45] and Auger processes [46-50], resulting in (d) hot carriers and hot phonons [41, 44, 52].

Notwithstanding the large number of experimental and theoretical efforts made so far, the physical mechanisms involved in carrier dynamics in MQWs are not yet well understood. In this work, optical and structural properties as well as vertical transport of three different MQW heterostructures are studied using cw-PL, TRPL and HRXRD.

2. MQW heterostructures and experimental procedure

Three $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ MQW lasers structures labeled A, B and C respectively, grown on n-doped ($2\times10^{18}cm^{-3}$) InP substrates by metalorganic vapor phase epitaxy (MOCVD) are investigated. They consist of a 1.5 μm n-doped (2×10^{18} cm^{-3}) InP buffer layer (not shown in the figures), followed by a first step-like n-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP confinement region. The active region of structure A contains four 1.5% compressively strained undoped InGaAsP QWs emitting at λ = 1.55 μm at room temperature (RT). The structures B and C contain 8 and 12 undoped 1 % compressively strained InGaAsP QWs respectively, emitting at 1.3 μm at RT. Those QWs are separated by p-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP barriers. Their active regions are followed by a step-like p-doped (4 ×

10^{17} cm^{-3}), unstrained InGaAsP second confinement region. Finally, the structures end with 700 Å InP cladding layer. A schematic of the energy band diagram and many other parameters are given in figure A-1 and figure A-2.

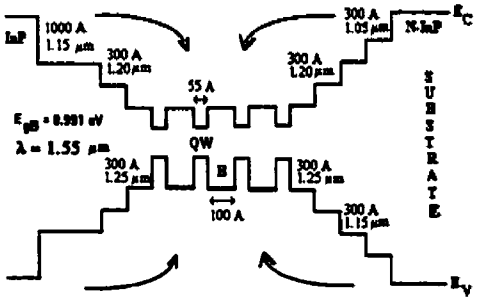


Figure A-1: band diagram of A.

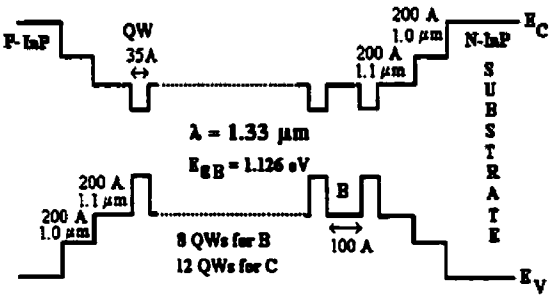


Figure. A-2 : band diagram of B and C.

3. Results and discussion

3.1 Continuous-wave photoluminescence

Cw-PL measurements, at 77 K and at 300 K, was performed using the 488 nm (2.54 eV) Argon ion laser line as an excitation source and the lock-in detection technique for the PL collection. We used an InGaAs based material detector that may cover a detection wavelength ranging from 850-nm to1650 nm.

3.1.1 Continuous-wave photoluminescence versus excitation density

The excitation density (E.D.) was varied from 40 W/cm^2 to over 10000 W/cm^2. Figure A-3 shows a typical PL spectra for the structures A, B and C at T_L = 77 K and under an E.D. of 250 W/cm^2. The main peaks, associated with the C1-HH1 transitions in the QWs are located at ≈ 0.85 eV, ≈ 1.033 eV and ≈ 1.026 eV for structures A, B and C, respectively. In the high energy side of the spectra, we note the presence of few weak peaks which may be associated with some transition signatures. In fact, barrier emissions are centered at 1.02 eV for structures A and 1.15 eV for B and C, respectively. The C1-LH1 and C2-HH2 transitions, located between the fundamental QWs and barrier levels are not well resolved.

Figure A-3 shows that the spectra of structure B is shifted toward the higher energy side with respect to the one of C. The difference between the positions of the main peaks is ≈ 7 mV. This behavior may have two origins : a) because the thickness of the active region (AR) of structure C is wider than that of B, the number of carriers excited directly in the InP layer is higher for B, b) band-filling and hot carrier/phonon effects in its AR are more important than those in structure C. Moreover, for an excitation density of 60 W/cm^2 or lower, we observed shoulders located at the low energy side of the main peaks. The shoulders are centered at – 25 mV for structure A, at – 20 mV for B and C below the principal peak positions. One may associate these shoulders to excitonic transitions.

However, the exciton binding energy as experimentally [104]. observed and theoretically [105] estimated, is about 10 meV for an InGaAsP/InP structure with 65 Å QW's width. Moreover, we noted that the luminescence from the shoulder transitions become non-distinguishable as the excitation density (E.D.) have been increased. We attribute these transitions to band tails due to compositions inhomogenety and well width fluctuations [106]. In general, the associated density of states is low and therefore, the corresponding PL should rapidly reach a saturation level as the E. D. is being increased [107]. This subject will be discussed in more details and published elsewhere [270].

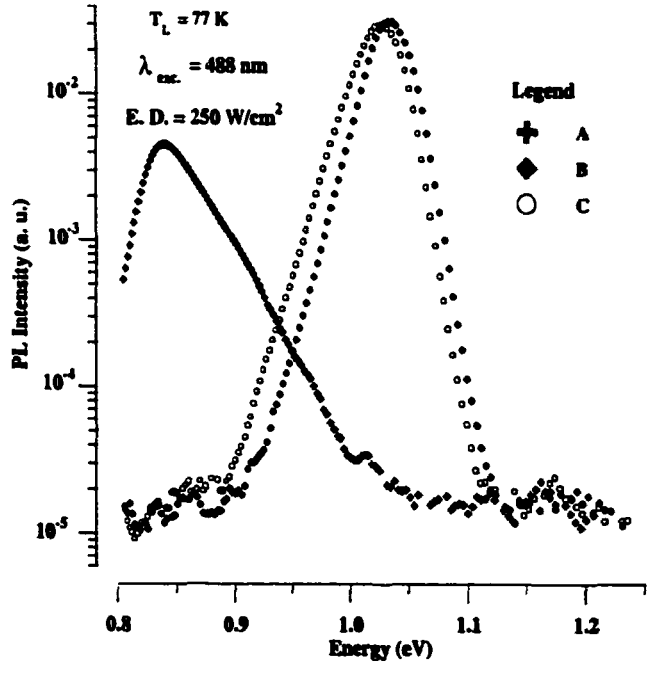


Figure A-3: Typical Cw-PL spectra of structures A, B and C (see text).

Figure A-4 shows the evolutions of carrier temperature (T_C) and the main peak position variation with the excitation density for structure B at T_L = 77 K. It reveals an energy shift of the C1-HH1 QWs transitions toward higher energy values as the excitation density is increased. The blue shift is about 6 meV and is attributed to band-filling effect. The variation of T_C with the excitation density provides information about how the carriers receive energy as well as how they lose energy. In fact, it was shown that carrier temperature (under steady state conditions) is determined by balancing the rate of energy input from the relaxing carriers (which is related to the excitation density) with the energy loss from the thermalized population [74, 109-113]. T_C is inferred from the high energy tail of the PL spectra according to $I_{PL}(E) \propto \exp(-E/k_B T_C)$, where $I_{PL}(E)$ is the PL intensity at energy E and k_B is Boltzmann constant.

As shown in figure A-4, T_C increases rapidly with the E.D. at low excitation regime, but rather slowly at high excitation regime. A slow increase of T_C at high excitation density regime was observed by Shah and co-worker [109, 112, 113]. This behavior was interpreted by the fact that at high excitation regime, carrier concentration approaches a critical value for which electron-electron and electron-LO-phonon scattering rates are equal [109, 111-113]. Under such circumstances, the amount of energy transferred by each photo-excited carrier to the carrier system increases less rapidly with the excitation density resulting in slow increase of T_C. Moreover, an amplification of phonon population may lead to their re-absorption by carriers. These phenomenons are known as hot-phonon/hot carrier effects. In addition, as the carrier population increases, non radiative

Auger recombination processes may act as carrier heating source [37-40]. More experimental and theoretical investigations are needed for better understanding of the interplay between the physical mechanisms involved in carrier dynamics in MQW lasers structures.

Figure A-5 shows that I_{PL} evolves linearly with I_{DE} at low excitation densities. This means that radiative recombination process dominates at low excitation regime. In fact, it was shown [122, 123] that the PL intensity (I_{PL}) can be related to the excitation intensity (I_{ED}) as $I_{PL} \propto I_{ED}^{\alpha}$ where the exponent α may take any value between 0.6 and 2. The exponent α may equal 0.6, 1 or 2 depending on which process among Auger recombination, spontaneous emission or interface recombination process dominates, respectively [122, 123]. The slopes of the curves in figure A-5 are slightly greater or equal to unity at low excitation regime and lower than unity (0.6, 0.7 and 0.95 for A, B and C respectively) for higher excitation regime (greater than ≈ 400 W/cm^2). Therefore, Auger processes dominates the relaxation mechanisms in high excitation regime and they may act as carrier heating [37-40] source and severely set the ultimate limitation to the maximum modulation bandwidth achievable in quaternary or ternary III-V semiconductor lasers MQWs.

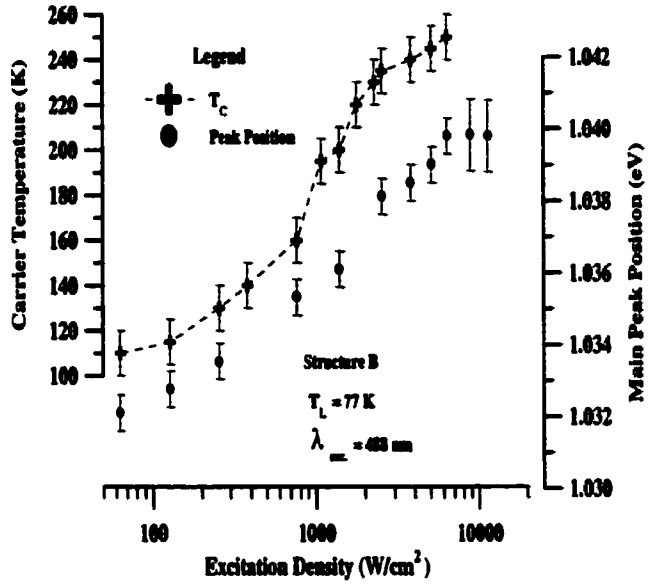


Figure A-4 : T_C and main peak position evolution with the excitation density in structure B

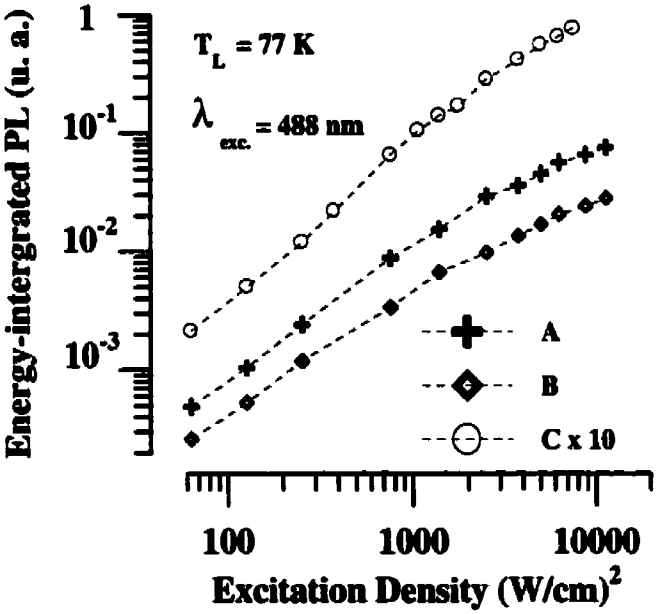


Figure A-5: Evolution of the energy-integrated PL with the excitation density of A, B and C.

3.1.2 Continuous-wave photoluminescence versus lattice temperature

From 6 K to RT, PL measurements were performed with the samples mounted in a variable temperature liquid helium cryostat. The 633 nm (1.95 eV) line from a He-Ne laser was used as an excitation source and a silicon detector combined to the based Fourier transform detection technique (BOMEM) was used for PL detection. An excitation density of ~ 5 W/cm^2 was maintained constant during the measurements. PL spectra of structures A and B showed a typical temperature dependence and will be reported elsewhere [270]. In contrast, as illustrated in figure A-6, structure C shows a non trivial PL behavior as the lattice temperature is varied. In fact, as the lattice temperature is decreased, we note the following : a) the position of the peak P2 moves toward higher energy. (b) Another peak P1 that is located at the low energy side appears. c) The PL ratio of the corresponding two peaks is inverted at T_L lower than 75 K. One may attribute the anomalous PL characteristics to an atomic ordering effect [156, 162, 164, 168, 172-176, 185, 186], which was reported in more than sixty papers in the last few years (see [270] for deeper discussion). However, our HRXRD measurements do not support this hypothesis [270]. Other possible explanations for the observed behavior are: (i) at 6 K, the peak P1 is about 25 to 30 meV below the higher energy peak and therefore, P1 can be attributed to electron-acceptor transitions (e-A). (ii) The thickness of structure C active region exceeds a critical value [271, 272]. Taking into account the 1 % compressive strain, the constraint may have relaxed, resulting in band-gap modification at

low T_L. Detailed explanation involving eventual crystal defects [128] or donor-acceptor pair (DAP) recombinations [124, 187] will be given elsewhere [270].

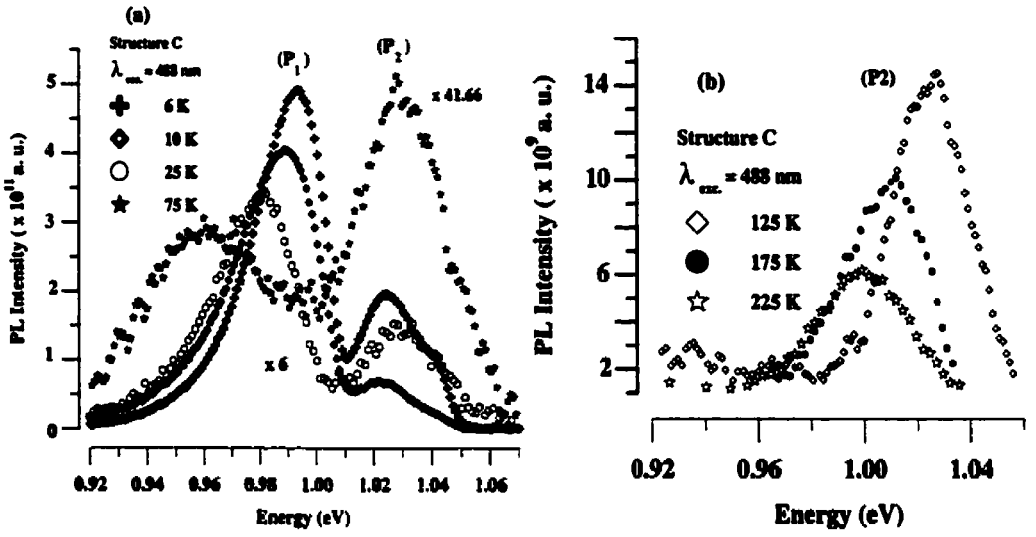


Figure A-6 : PL dependence on lattice temperature of structure C.

In figure A-7, we show the temperature dependence of PL peak energy of structure A and C. As T_L increases, the band-gap of structure A and P2 peak position for C shift of about 50 meV and 60 meV to lower energy values, respectively. These amounts of band-gap shrinkage are similar to that of bulk InGaAsP and may be described by the phenomenological Varshni equation [124]: $E_{gap}^{InGaAsP}(T) = E_{gap}^{InGaAsP}(0) - \alpha \frac{T^2}{(\beta + T)}$ where $E_g(0)$ represents the band-gap at 0 K. A data fit using the above equation is represented by the dashed line in figure A-7. The obtained value for β is 320 K for both structures while α values are 3.5×10^{-4} and 4×10^{-4} eV/K for A and C, respectively. Temkin and

co-workers [126] reported similar results for InGaAsP/InP MQW structures. However, from one paper to another, one may find a small difference in the reported red shift.

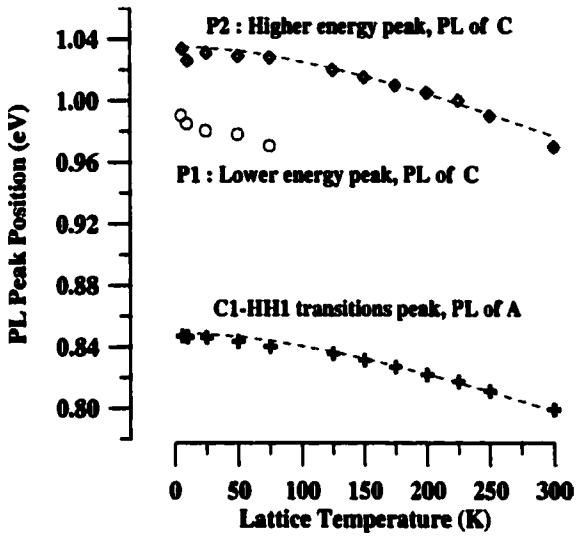


Figure A-7 : Temperature dependence of PL peak energy of structure A and C.

This may be explained by different fluctuations of the QW layers thickness across the lateral sample direction [114] in the different structures. As a consequence, the band gap of the QW is modulated in real space. As will be seen in TRPL results section, the drift times (~ ps) are shorter than the recombination times (~ ns) and therefore, the energy band modulation can lead to a significant drift of the photo-generated free carriers into the minima of the modulation bands. At low lattice temperature, most of the free carriers occupy low energy states and the energy of the PL peak represents mainly the band gap minima. By increasing the lattice temperature, more and more free carriers will occupy higher energy states and the PL peak broadens and shifts continuously toward higher

energy. The effective band gap and the overall PL peak position is (at least) controlled by two opposite and competitive processes. The first causes a blue shift while the second (dominant) causes a red shift.

Figure A-8 shows the energy-integrated PL intensity variation with T_L for structures A and C. At high T_L, where carrier interactions with LO-phonons are the dominant relaxation mechanism, the PL intensity decreases exponentially. It is well known that PL intensity and carrier lifetime depend on lattice temperature. In the QWs, carrier lifetime depends simultaneously on the times of radiative and non-radiative relaxation processes. An estimate of the activation energy (E_A) of non- radiative processes may be obtained by fitting the energy-integrated PL intensity variation with T_L using the equation [188-190]:

$$I(T_L) = I_0 \frac{\tau(T_L)}{\tau_R(T_L)} = \frac{I_0}{1 + \left(\frac{\tau_R(T_L)}{\tau_{NR}^0}\right) \exp\left(-\frac{E_A}{k_B T_L}\right)} \qquad (1)$$

where τ is the overall lifetime, τ_R is the radiative lifetime of free and localized excitons, and τ_{NR} is an activated non-radiative lifetime. The best values obtained for E_A and τ_R / τ_{NR}^0 parameters are 70 ± 10 meV and $(6 \pm 0.2) \times 10^2$ for A and 45 ± 3 meV and $(8 \pm 0.3) \times 10^2$ for C. The activation energy of non radiative recombination processes is lower for structure C. This result is predictable since the QWs of C are narrower (35 Å) compared to those of A (55 Å). Moreover, as will be seen in the next section, TRPL

measurements reveal radiative lifetimes of ~ 1.5 ns and ~ 1.3 ns for A and C respectively. Therefore, τ_{NR}^{0} equals to ~ 2.5 fs and ~ 1.5 fs for A and C respectively. We interpret this shorter scattering time for structure C in terms of bigger overlap between the QWs states and those of the barriers in structure C. The temperature evolution of the full width at half maximum (FWHM) of the PL spectra of structure A is shown in figure A-9. If we let Γ be the FWHM of the PL peak, then $\Gamma^2 = \Gamma_1^2 + \Gamma_2^2 + \Gamma_{LO}^2 + \Gamma_{CLT}^2$. Γ_1 is the linewidth at 0 K that results from random spatial fluctuation in the InGaAsP composition, Γ_2 is the contribution from quantum size effects due to interface roughness, Γ_{LO} is the contribution from longitudinal optical phonons and Γ_{CLT} is the broadening part caused by the finite carrier lifetime [116].

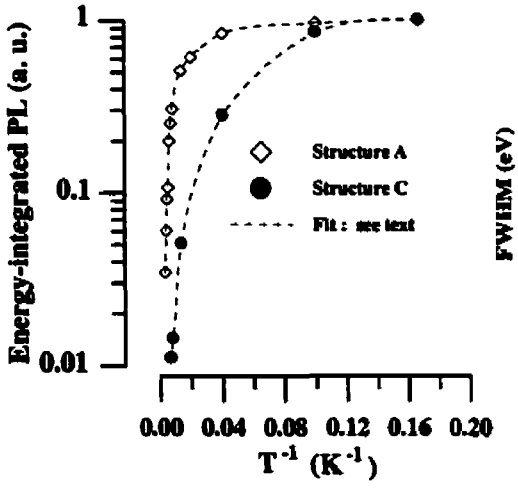


Figure A-8 : Evolution of the energy integrated PL intensity with T_L for A and C.

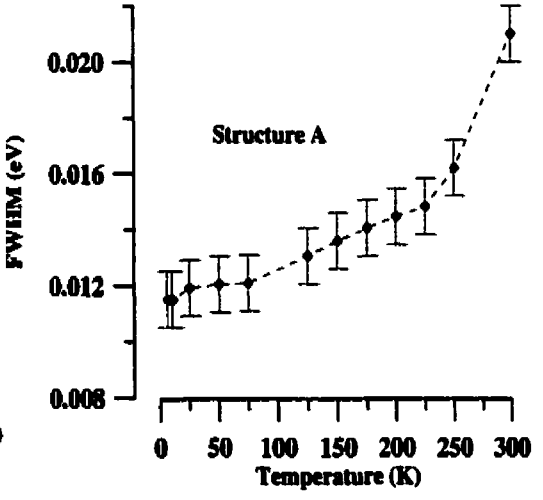


Figure A-9: Variation of the FWHM of PL spectra of A with T_L.

A careful inspection of figure A-9 shows a small variation of the FWHM at low and intermediate temperatures (below 100 K) reflecting the linewidth broadening contribution (~12 meV) which may be caused primarily by finite carrier lifetime and secondary by variation of the QW width, changes in the potential height due to random variation of the alloy composition (QW and/or barrier) and abruptness quality of interfaces. However, when the temperature is raised from ~100 K to 300 K, the FWHM jumps from ~12 meV to 20 meV. For T_L ranging from 100 K to 300 K, longitudinal optical phonons are strongly activated and accordingly their contribution Γ_{LO}, of about 8 meV, is consistent with the 8.9 meV determined from absorption measurements [117] at 300 K for 1.33 μm InGaAsP.

3.2 TRPL measurements results

For TRPL measurements, a pulsed Ti-sapphire laser (~100 fs, ~ 82 MHz) operated successively at λ = 740 nm, 820 nm and 880 nm, is used as an excitation source. A GaAs photomultiplier combined to an up-conversion detection technique [95], with sub-picosecond resolution, were used for signal detection. Typical TRPL spectra at several delays after the excitation pulse, at T_L = 77K and for excitation density of ≈ 1000 W/cm^2, are shown in figure A-10 for structures A. The high-energy peak, at 1.43 eV (± 10 meV), comes mainly from carrier recombination in the InP buffer layer (BL). The low energy peak at ≈ 0.86 eV corresponds to the QWs ground state C1-HH1 transitions (QW-GS). In

Between these low and high energy peaks and at low delay times, we note a broad PL bands corresponding to emissions from the step-like confinement regions (CR) and from the InGaAsP barriers (Bar).

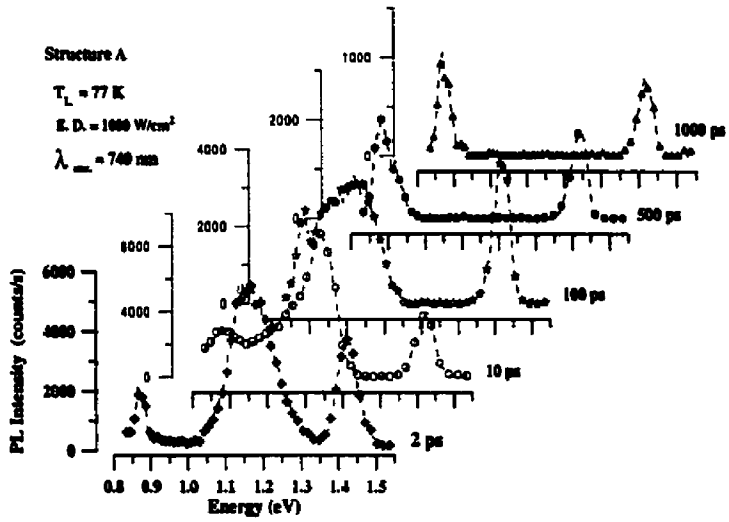


Figure A-10 : TRPL spectra of structure A.

The time evolution of these PL spectra indicates a net transfer of electrons and holes from the BL to the step-like confinement regions (CR), from the later towards the active region barriers and finally to the QWs. We should note however, because in InGaAsP/InP system the valence band offset is greater than the conduction band offset [194] (deeper hole well) combined with the large valence band effective mass, the transport should be controlled by holes which are slower than the electrons in the CR and in the QWs. In Order to get deeper insight and quantitative information about transport and capture times, the time dynamical behavior of some bands are studied. Figures A-11 and A-12

show the temporal evolution of the PL signal for different transitions observed in structure A, at $T_L = 77$ K and under an excitation density of ≈1000 W/cm^2.

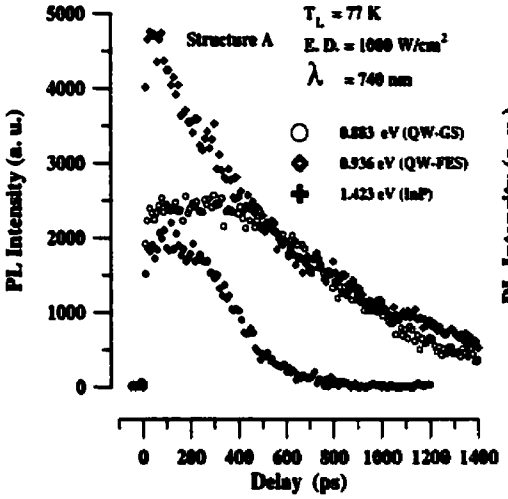


Figure A-11 : QWs and BL PL temporal evolution.

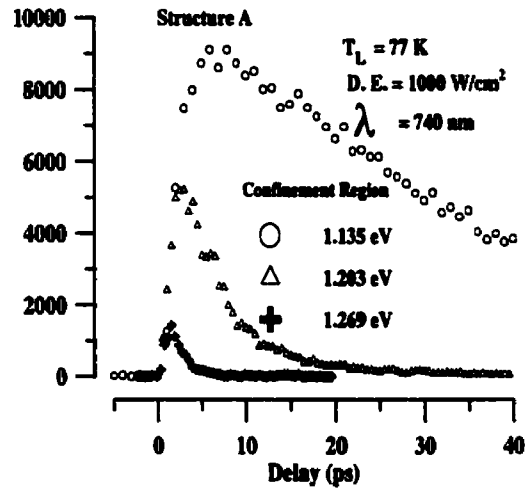


Figure A-12 : PL temporal evolution of the CR.

The different detection energies in figure A-11 correspond to the QW ground state transition (QW-GS) at 0.883 eV, the first QW excited state transition (QW-FES) at 0.936 eV, and the InP buffer layer ground state transition at 1.423 eV. The time-resolved PL signals in figure A-12 correspond to different transitions in the CR. We clearly observe an exponential decay of the PL signal in most of the cases and, if we assume a simplified three-level model, we can approximate the PL time behavior as given by a difference of the two exponentials [197]:

$$I_{PL} = I_0 \frac{\tau_d}{\tau_r - \tau_d}\left[\exp\left(-t/\tau_r\right) - \exp\left(-t/\tau_d\right)\right] \quad (2)$$

where τ_r and τ_d represent the rise and the decay times of the PL intensity, respectively. Table A-1 summarizes the rise and decay times obtained from the best fit by the above equation. The short decay time of the CR (1.5 ps < τ_d < 25 ps) and the fast rise time of the QW PL intensity (≈ 9 ps) indicate an efficient carrier relaxation and capture by the QWs. The relatively long PL decay time (1200 ± 100 ps) observed at the QW ground state energy is an indication of a high QW structural quality. As shown in table A-1, the PL rise times continually increase with decreasing the PL detection energies. In fact, the PL rise time varies from ≈ 1.5 ps in the confinement regions (1.269 eV) to ≈ 5.5 ps in the AR barriers and to ≈ 9 ps in the QWs.

Table A-1 : Rise and decay times of some bands observed in structure A. $\lambda_{exc.}$= 740 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K

Band-energy (eV)	1.423 InP	1.269 CR	1.203 CR	1.135 CR	1.037 Bar.	0.936 QW-FES	0.883 QW-GS
τ_r (ps)	5.5 ± 1	1.5 ± 0.5	2 ± 0.5	3 ± 0.5	5.5 ± 0.5	7 ± 0.5	9 ± 1
τ_d (ps)	750 ± 25	3 ± 0.5	7 ± 1	25 ± 3	70 ± 10	200 ± 20	900 ± 100

Before being captured into the QWs by passing from the unbound three-dimensional to the quasi-two-dimensional confined states, the photo-excited carriers experience several scattering processes. Therefore, the QWs rise time includes carriers transport in the CR

and barriers as well as carriers relaxation via optical phonons to the band edge, inter-sub-band relaxation to the lowest sub-band levels for both electrons and holes, and finally the capture of the carriers into the QWs. In a simple picture, however, carrier transfer can be divided into two time sequential processes : carrier transport and carrier capture. In this schema, the first difference of ~ 4 ps may be attributed to electrons and holes transport from the InP buffer layer to the immediate vicinity of the first QW. On the other hand, the difference between PL rise times of the AR QWs transitions and the AR barriers transitions of ~ 3.5 ps can be interpreted as the carrier capture and relaxation time in the QWs since these barriers are thin enough for carrier transport time therein to be neglected [65]. This capture time is in good agreement with the 4 ps reported by Westland and coworkers [198] for InGaAsP/InP and with that of 4.5 ps reported for a 1.53 % compressively strained 1.55 μm-InGaAs MQW optical amplifier [199] (samples # 2). The authors of reference [199] reported a capture times ranging from 2 to 7 ps for their different samples.

Figures A-13 shows the temporal PL evolution for structure A excited, respectively, with 820 nm and 880 nm pulsed laser wavelengths, whereas the E. D. and the lattice temperature was kept the same as for the 740 nm excitation case. Complete TRPL spectra and temporal PL evolution plots will be given elsewhere [270]. Tables A-2 and A-3 summarize the rise and decay times of some bands observed in A, B and C under the above excitation conditions. It is found that the rise times of the CR and the QWs in structure A decreases slightly (~ 2 ps) as compared to those given in table A-1

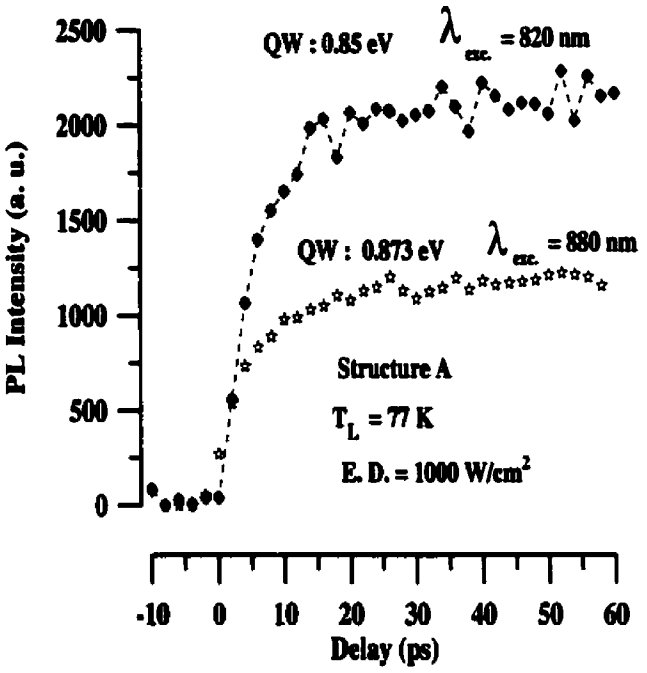


Figure A-13: Time Plot of structure A QWs excited at 820 nm and 880 nm.

Table A-2 : τ_r and τ_d of some bands observed in structure A and of the QWs in B and C. $\lambda_{exc.}$= 820 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K

Structure	A			B	C
Band energy (eV)	1.411 InP	1.131 CR	0.85 QW-GS	1.049 QW-GS	1.049 QW-GS
Rise time (ps)	4.5 ± 0.5	2 ± 0.5	7 ± 0.5	7 ± 0.5	5 ± 0.5
Decay time (ps)	700 ± 25	10 ± 1	1100 ± 100	950 ± 50	900 ± 25

Table A-3 : τ_r and τ_d of some bands observed in structure A and of the QWs in B and C. $\lambda_{exc.}$= 880 nm, E. D. ≈1000 W/cm^2 and T_L = 77 K

Structure	A			B	C
Band energy (eV)	1.136 CR	1.017 Bar	0.873 QW-GS	1.048 QW-GS	1.048 QW-GS
Rise time (ps)	1.5 ± 0.5	3 ± 0.5	6 ± 0.5	6 ± 0.5	4 ± 0.5
Decay time (ps)	12 ± 2	50 ± 10	600 ± 20	650 ± 25	600 ± 10

Within the estimated uncertainty, the rise time of the InP BL is almost unchanged. This behavior may be attributed to the following effects. Direct gap III-V semiconductors have subsidiary conduction band valleys in the L and X directions. Optical excitation that excites electrons at such high kinetic energies may cause the transfer between these subsidiary valleys to be energetically possible.

Shah and coworkers [206] used 2.04 eV pulsed dye laser line as an excitation source for InP and GaAs. They reported a Γ-L transfer time of ~ 100 fs and an average return time of ~ 2 ps from L to Γ in GaAs and no Γ-L electron transfer in the InP. In our case, all the used excitation wavelengths excite below L valleys in both InP and InGaAsP. In fact, Γ-L separations are 0.51 eV and 0.61 eV for InGaAsP [192] and InP [205], respectively. However, immediately after the excitation pulse, high T_C different from T_L is observed [270]. Moreover, it is found that T_C increases with the excitation energy [170]. Therefore, one may expect a *small portion* of hot carriers to be transferred in L valley in the InGaAsP. Transfer between satellites of *small portion* of carriers leads to an increase of the rise time of QWs PL. Yet, the associated amount of increase in the rise time is not necessary equal to a Γ-L transfer time.

Therefore, we associate the difference in QWs rise time to a higher initial T_C observed with λ = 740 nm excitation case. In fact, hot-carrier/phonon effects reduce carrier relaxation rates and therefore, increase the rise time of he PL in the QWs. On the other hand, figure A-13 shows that the PL from the QWs remains saturated for several tens of

ps. During this time interval, the rate of carrier transfer and relaxation into the QWs is equal to the rate of carrier escape from the QWs. This behavior may be explained as follow : (a) the height of the barriers may decrease due to flattening in the built-in charge space potential inducing an enhancement of excess carrier spillover to the CRs, i.e., emission of carrier out of the active layer. (b) At high carrier density, carrier-phonon interactions are strongly screened by carrier-carrier interactions. The decay times of the QWs and CRs become somewhat longer as we previously reported by Monte-Carlo simulations [195]. Finally, as given by tables A-2 and A-3, the decay and rise times of the PL from the QWs in structure C are shorter than those of B. These observations support two previously mentioned facts: (1) band-filling and/or hot-carrier/phonon effects are most important in structure B; (2) carrier lifetime is shorter in structure C which may be attributed to composition inhomogeneity in the AR layers and/or constraint relaxation and associated structural defects as suggested in cw-PL results section.

4. Conclusion

In summary, we have studied optical and structural properties as well as vertical carrier transport in three $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ MQW laser structures. The unusual temperature PL behavior observed in the thicker structure C was discussed in terms of electron-acceptor, donor-acceptors pair and strain relaxation. The overall observed red shift of the PL peaks as the lattice temperature was increased is a result of band-gap shrinkage (dominant) and blue shift caused by fluctuations in the QW layer thickness across the lateral sample

direction. For TRPL measurements, carrier cooling rates was discussed in terms of different scattering mechanisms. It is found that the rise times of the QWs and the confinement region increase slightly (~2 ps) on decreasing the excitation wavelength. The observed difference is attributed to a higher initial carrier temperature associated with the shorter excitation wavelength. On the other hand, comparable times of ~ 4 ps are observed for the carrier transport and relaxation time within the confinement region and the carrier capture time in the quantum wells. Accordingly, we highlighted some processes that heat the carriers or screen their interactions with LO-phonons inducing a reduction of the carrier relaxation rate and the quantum efficiency. Among these processes, we found: hot-carriers, hot-phonons, Auger recombinations, carrier-carrier interactions, and carrier spillover. The majority of the above processes have unwanted effects such as longer photon lifetime, smaller photon density and larger laser linewidth. Therefore, under high frequency modulation in telecommunication systems, these phenomenons set the ultimate limitation for lasers to translate, as fast and precisely as possible, the temporal variation of the modulation into a corresponding emitted light intensity variation.

Acknowledgments

We thank NSERC for financial support of this project.

Références

See thesis bibliography, starting at the page # 200

Voir la bibliographie de la thèse, à la page n° 200.

ANNEXE B

Photoluminescence study of carrier dynamics and recombination in a strained InGaAsP/InP multiple-quantum-well structure

A. D. Güçlü,[a)] C. Rejeb,[a),*] R. Maciejko,[a)] D. Morris,[b)] and A. Champagne [a)]

[a)] Optoelectronics Laboratory, Department of Engineering Physics, École Polytechnique, P.O. Box 6079, Succ. "Centre-ville", Montreal (Québec), Canada H3C 3A7.

[b)] Centre de Recherches sur les propriétés électroniques de matériaux avancés, Département de Physique, Université de Sherbrooke, Sherbrooke (Québec), Canada J1K 2R1.

Article publié dans

Journal of Applied Physics

vol. 86, no.6, p. 3391-3397, 1999.

* Present address : Nortel Networks, 1285 Baseline Rd, P.O. Box 04577C04, Ottawa (Ontario). Canada K2C 0A7.

Abstract

Carrier transport and recombination in a strained InGaAsP/InP multiple-quantum-well structure emitting at 1.55 μm are investigated experimentally and theoretically using both time-resolved photoluminescence and Monte Carlo simulations. A method for including carrier recombination in a Monte Carlo simulation is described. The calculated spectra are in good agreement with the experimental results. They show that nonradiative recombination is the principal recombination process in the first 100 ps and that the screened electron–phonon interactions are responsible for the high luminescence from the quantum-well higher energy levels.

1. Introduction

Strained layer InGaAsP/InP heterostructures have received a great deal of attention for applications in optoelectronic devices, particularly quantum-well (QW) lasers operating at the wavelengths of minimal absorption 1.55 μm and zero dispersion 1.3 μm of commercial silica optical fibers. The primary motivation for this approach is that strain-induced modifications of the in-plane valence-band dispersion result in a reduction of intervalence-band absorption and nonradiative Auger recombination, for instance. Moreover, ultrafast carrier dynamics in heterostructures must be understood in order to get a good grasp of the charge-transport issues in various devices. The major physical

processes that set the ultimate limitation for the maximum modulation bandwidth in multiple quantum well (MQW) lasers are: a) the differential gain and the photon lifetime in the cavity, which are determined by material properties and device structure [273], b) the optical nonlinear gain coefficient, which is affected by spectral hole burning and the gain saturation effect [15, 17], c) carrier transport [25, 26], including carrier tunneling between wells [27], carrier capture, and transfer between wells and barriers [33], and d) the dynamic heating caused by injection, stimulated and spontaneous emission [44], free-carrier absorption [42, 44], and Auger processes, resulting in e) hot carriers and hot phonons [41]. Notwithstanding the large number of experimental and theoretical efforts made so far, the physical mechanisms involved in carrier dynamics in MQWs are not yet well understood. In this work, carrier relaxation, capture, and recombination are investigated.

The theoretical work aimed at explaining the capture process followed principally two different approaches. Shichijo et al [274] and Tang et al [275] used a semiclassical description to show that the capture efficiency decreases when the QW width becomes smaller than the optical phonon-limited mean free path. More elaborate quantum-mechanical approaches [66, 276] which calculate the longitudinal optical phonon scattering rates from initial states in the barrier into final QW states, predict strong oscillations of 10–100 ps in the capture time as a function of the well width. Experimentally, most observed capture times seem to contradict those theoretical predictions [277-279] although some papers [280, 281] show the predicted oscillations.

On the other hand, some authors [199, 280, 281] suggest that at the high carrier densities found in laser amplifiers, carrier dynamics are better described in terms of diffusion. The Monte Carlo technique is increasingly becoming one of the preferred tools for the simulation of quantum-well devices. In recent years, simulations have been performed of nonequilibrium carrier transport, including thermalization and quantum capture, in quantum-well structures [282-286]. But to our knowledge, no work has been done which includes radiative and nonradiative carrier recombinations in a Monte Carlo calculation. In this article, a multiple-quantum-well structure under high optical injection is modeled using a semiclassical Monte Carlo simulation in which carrier recombination is included. The time-resolved photoluminescence (TRPL) spectra are calculated and compared with the experimental results. In Sec. II, the experimental technique and the structure are described. Section III presents the simulation details and the recombination model. In Sec. IV, the simulation results are analyzed and compared to those obtained experimentally.

2. Experiment

We investigate carrier dynamics in an InGaAsP/InP MQW laser structure. A schematic representation of the structure is given in Fig. B-1. The structure was grown on a n-doped (2×10^{18} cm^{-3}) InP substrate by metal-organic chemical-vapor deposition. It consists of a 1.5 μ m-thick n-doped (2×10^{18} cm^{-3}) InP buffer layer, followed by a first step-like n-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP-confinement region. The active region contains four 55 Å

1.5% compressively strained undoped InGaAsP QWs emitting at 1.55 μm at room temperature. Those QWs are separated by 100 Å p-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP barriers. cladding layer. The active region is followed by a step-like p-doped 4×10^{17} cm^{-3} unstrained InGaAsP second confinement region. Finally, the structure ends with a 700 Å InP.

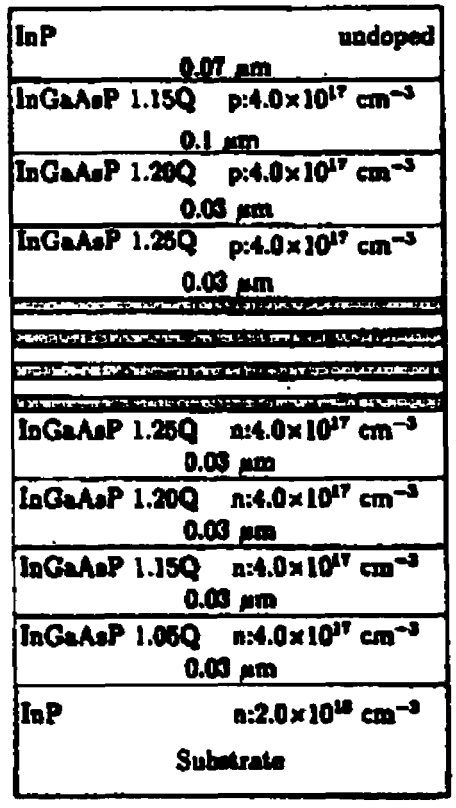


Figure B-1: Schematic representation of the structure under investigation : dark gray, 1.5% compressively strained undoped InGaAsP QW (1.55 μm); light gray, unstrained InGaAsP barriers p: 4×10^{17} cm^{-3} (1.25 μm). 1.15Q, 1.20Q, and 1.25Q represent the gap energies of the confining regions in μm.

For the TRPL experiments, a pulsed Ti–sapphire laser (λ = 740 nm, 100 fs, 82 MHz) is used as an excitation source. An up-conversion detection technique with subpicosecond resolution and a GaAs photomultiplier were used for signal detection. The carrier dynamics in MQWs are studied as a function of excitation density at 77 K.

3. Simulation details

The model consists of a Monte Carlo calculation based on a self-consistent Poisson solver using the cloud-in-cell mesh-charge assignment [287, 288]. As will be explained in Sec.III A, a recombination model is included in the algorithm. An adapted mesh in space is used to calculate the potential in the active region so as to minimize the field fluctuations. The field adjusting time step is set to 0.5 fs. An ensemble of 30 000 superparticles is used for the computation of the electron and hole distribution functions. All the calculations were performed at 77 K. The quantum-mechanical confinement of carriers in the quantum-well regions is neglected. Thus, the carriers have a three-dimensional density of states. In the bulk-mode approximation, the scattering mechanisms such as the acoustic and optical phonons, ionized impurities, and alloy scattering are used. The electron–electron, electron-hole, hole–hole, and screened phonon interactions are added following the expressions of Osman and Ferry [289]. The exciton and hot-phonon effects are also neglected in this work.

A. Initial conditions

The initial carrier distributions just after the optical injection are obtained by adding the excess carrier distributions to the equilibrium carriers. In order to reduce the simulation time needed to reach the steady state before the optical injection, the spatial distribution of carriers is approximated using the results of a classical drift–diffusion simulation. Once the steady state is reached, the laser pulse which gives rise to transitions from the light, heavy, and split-off bands to the conduction band is applied. The relative number of carriers generated by each transition is deduced from the joint density-of-state-dependent absorption rates, given by [290]

$$\lambda_i(E_{\hbar\omega}) = \frac{4\pi^2 e^2 \hbar}{m_0^2 \in} \frac{1}{\hbar\omega} |M_i|^2 D\left(E_{\hbar\omega} - E_g^i\right) N_\gamma \qquad (1)$$

where M_i is the optical matrix element of the ith transition, D is the joint density of states, N_γ is the photon occupation, $E_{\hbar\omega}$ is the photon energy, E_g^i is the gap energy of the ith transition, and m_0 is the free-electron mass. The carrier energy resulting from those transitions is calculated from the energy and momentum conservation rules. Finally, the carriers are distributed exponentially in space, obeying the Beer–Lambert law.

B. Recombination model

Recombination mechanisms can be classified into two groups, radiative spontaneous or stimulated and nonradiative. Nonradiative mechanisms include recombination at defects, surface recombination, and Auger recombination, among others. For long-wavelength semiconductor lasers, however, the Auger process is generally the predominant nonradiative mechanism [46]. In this work, three recombination processes are taken into account: (1) the spontaneous recombination of an electron and a hole; 2) the Auger process called CCHC involving two electrons, one heavy hole, and a final excited electron in the conduction band; and 3) the Auger process called CHHS involving one electron, two heavy holes, and a final excited hole in the split-off band. The total recombination rate can be approximated by [291]:

$$R_{rec} = Bnp + C_1 n^2 p + C_2 np^2 \qquad (2)$$

where B is the spontaneous recombination coefficient, C_1 and C_2 are the Auger coefficients for the CCHC and CHHS processes, and n and p are the electron and hole densities. The carrier density dependency of B is neglected. Several experimental studies have been done to determine the recombination coefficients. The generally accepted value for the radiative coefficient B is about 1×10^{-10} cm3 s^{-1} [46, 120, 292]. The experimental values for the Auger coefficients are less consistent and vary between 0.1

and 2×10^{-28} cm^6 s^{-1} [46, 47, 114, 291-294]. In this work, we take $B = 0.1 \times 10^{-10}$ cm^3 s^{-1} and $C_1 = C_2 = 1 \times 10^{-28}$ cm^6 s^{-1}, which give a good agreement with the experimental data.

In order to include recombination, we use the discretized form of the recombination rate equation

$$R_i\left(\bar{n}_i, \bar{p}_i\right) = \frac{\Delta \bar{n}_i}{\Delta t} = \frac{\Delta \bar{p}_i}{\Delta t}, \tag{3}$$

where $\bar{n}_i$ is the mean electron density in the ith layer. This is a good approximation since the carrier density does not vary much in each quantum well. Furthermore, the relation between the number of superparticles N_i and $\bar{n}_i$ is given by

$$N_i = \frac{S_e}{e} \bar{n}_i V_i, \tag{4}$$

where S_e is the supercharge, e is the elementary charge, and V_i is the volume of the layer. To obtain a good discretization in time, t must be chosen such that the number of superparticles ΔN_i to be removed from the simulation for each time step does not exceed 1 by much. Setting the recombination time step t to 50 fs gives a good discretization. The algorithm can be summarized as follows: for every time step, the number of superparticles in each layer is counted in order to calculate $\bar{n}_i$, $\bar{p}_i$ from Eq. 4 and

$R_i\left(\bar{n}_i, \bar{p}_i\right)$ from Eq. 2. Next, Eqs 3 and 4 are used to determine the number of superparticles N_i to be recombined in each region. Clearly, the calculated ΔN_i is not necessarily an integer and can be greater or less than 1. The integer part of ΔN_i gives the number of superparticles to be removed from the simulation. Then, superparticles chosen at random are removed from the simulation and the remainder (calculated ΔN_i minus the number of superparticles effectively recombined) is accumulated for the next time step. For instance, if $\Delta N_i = 2.3$, we remove two superparticles from the simulation and add 0.3 to ΔN_i in the next time step. Since a time step of 50 fs is sufficient, the model is not time consuming from the computational point of view and it can be easily generalized to other recombination mechanisms if the dependency on carrier density is known. It neglects the explicit energy dependency of the recombination mechanisms though.

4. Results and discussion

A. The effect of the carrier–carrier and screened carrier–phonon interactions

The effect of the electron–hole (e–h), electron–electron (e–e), hole–hole (h–h), and screened carrier–phonon interactions (c–sph) on the ultrafast relaxation of photoexcited carriers in the active region were examined using the Monte Carlo approach. At high carrier densities, those interactions are very important. Especially screening considerably weakens the electron–phonon interactions compared to the hole-phonon interactions. In

Fig. B-2, we illustrate the mean energy of the electrons in the wells and $1.25Q$ barriers as a function of time. Curve 1 corresponds to the situation where the carrier–carrier (c–c) interactions and the screening of the carrier–phonon interactions are totally ignored.

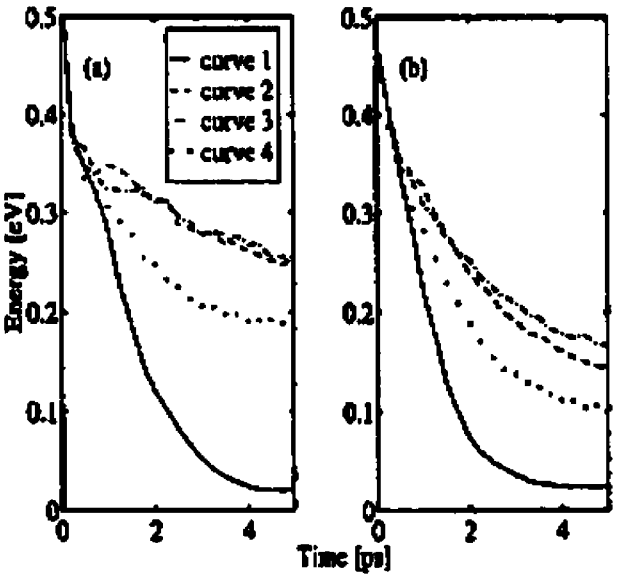


Figure B-2: Calculated mean-electron energy vs time (a) in the QWs, (b) in the 1.25Q barriers for 77K: curve 1, c-sph and c-c neglected; curve 2, c-sph; curve 3, c-sph, e-e, and h-h; curvbe 4, c-sph, e-e, h-h,and e-h.

The electrons are rapidly thermalized and at 5 ps, their mean energy is approximately 0.02 eV, which is twice as much as the energy corresponding to the thermodynamic equilibrium $(\frac{3}{2}k_BT$, at T = 77 K). The excess energy of the carriers after 4 ps is attributed to the high electric field in the active region of the structure. From examining curve 2, where the c–sph interactions are taken into account, we see that the cooling rate

is significantly reduced after 0.5 ps. This is because, as the carriers are captured, their densities increase and the carrier–phonon interactions are strongly screened. Especially in the QWs, at 5 ps, the mean energy of the electrons is 12 times higher than in absence of screening. When the e–e and h–h interactions are included, there is no significant change in the QWs, which is apparent on curve 3. However, in the $1.25Q$ barriers, the mean energy of the electrons increases slightly. This is attributed to the fact the e–e interactions redistribute the electrons into high- and low-energy regions, and since in the barriers the carriers are less energetic than in the wells, some electrons end up in regions where they can not emit optical phonons. Including e–h and h–e interactions causes an energy transfer from the higher-energy electrons to the lower-energy holes such that the mean energy of the electrons decreases, which is shown by curve 4. Those results are in agreement with the Monte Carlo calculations of Osman and Ferry [289] who showed that at high carrier concentrations the energy flow from the electrons to the lattice is primarily through the e–h interaction and then through the h–ph interaction.

In Figs. B-3a and B-3b, we display the distribution functions for the carriers at 5 ps, in the QWs and $1.25Q$ barriers, respectively. It is clear that the QW electrons are not in thermal equilibrium with the barrier electrons. One should note that in the QWs the electron mean energy is higher than the QW depth (0.1 eV), which means that they can easily escape to the barrier regions. As a result, cooling is even slower. On the other hand, the heavier holes are in thermal equilibrium with the lattice such that they are more efficiently confined in the wells.

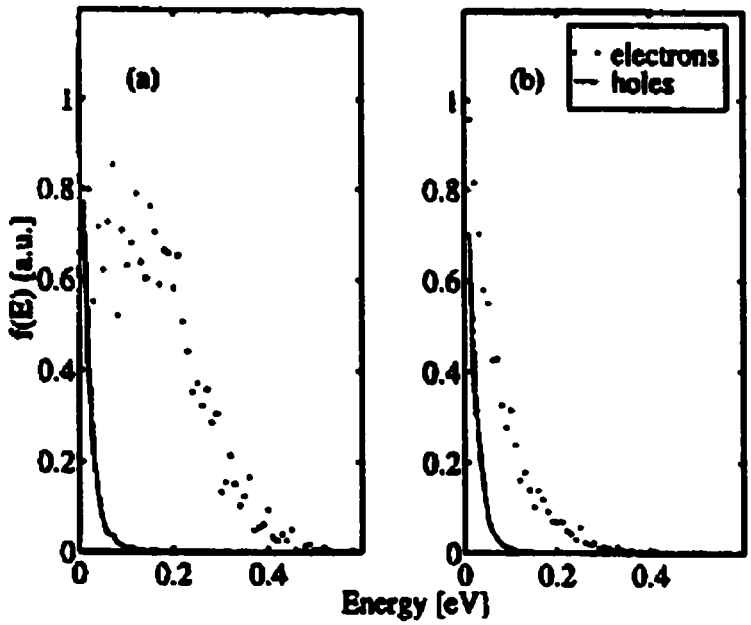


Figure B-3: Calculated distribution functions (a) in the QWs and (b) in the 1.25Q barriers for electrons and holes at 5 ps, T = 77 K.

B. Carrier capture and recombination

In this section, we present the results of our Monte Carlo calculation applied to the study of carrier capture and recombination in the quantum-well region. Figure B-4 shows the evolution of electron and hole densities as a function of position for 0, 10, 50, and 100 ps. At 0 ps, just after the excitation, there are 5000 superparticles in thermodynamic equilibrium and 25 000 optically injected superparticles, distributed exponentially in space according to the Beer–Lambert law. The excitation density at the surface of the device is approximately equal to 4×10^{18} cm.$^{-3.}$ At 10 ps, the carrier densities in the wells reach their maximum. Charge neutrality is not satisfied in the wells due to the higher

hole effective mass. Thus, the hole density in the wells is found to be 1.5 times larger than the electron density. When recombination is neglected, the calculations show that from 10 ps onwards, the system does not evolve significantly.

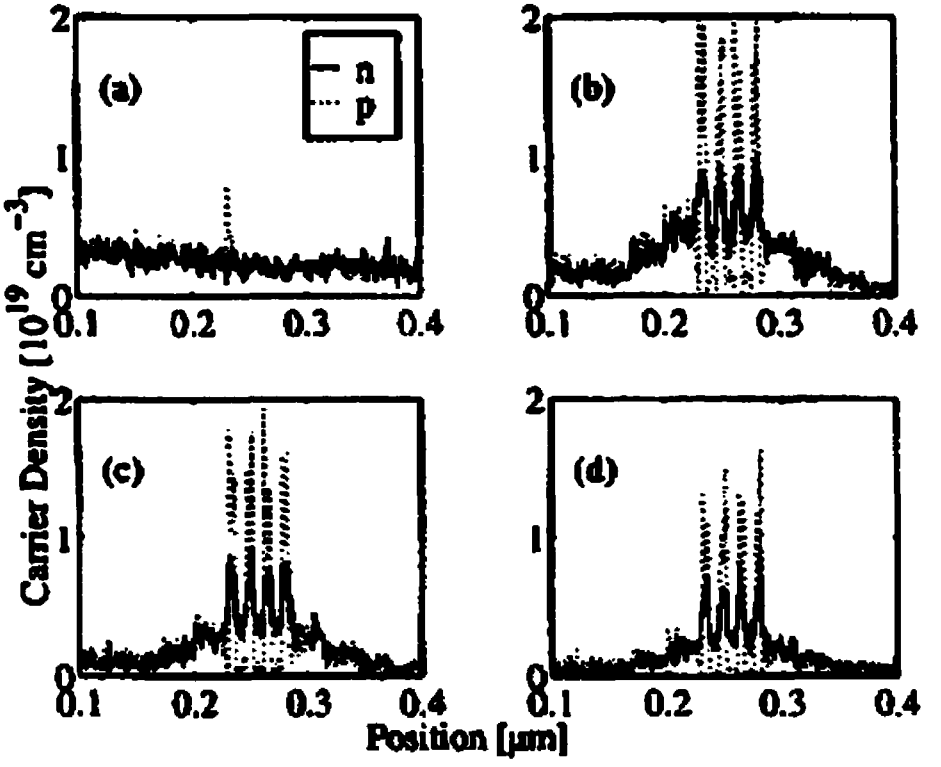


Figure B-4 : Calculated carrier densities vs position (a) at 0 ps, (b) at 10 ps, (c) at 50 ps, and (d) at 100 ps for T = 77 K.

On the other hand, the changes in the carrier density shown in the Figs. B-4c and B-4d result directly from the recombination in the wells. In the barrier region, recombination is weaker but the carrier density decreases faster than in the wells because of the carrier transfer from the barriers into the wells. The carrier dynamics in the wells is more clearly

seen in Fig. B-5, where we plot the mean hole and electron densities evolving with time. The 90% mark of the maximum electron and hole densities in the wells is reached in 6 ps. Since the holes are excited to lower energies than the electrons, they are captured more rapidly in the wells, as shown more explicitly in Fig. B-6 where we plot the time derivative of the mean-carrier density. But, since the maximum of the mean-hole density is higher than the maximum of the mean-electron density, the capture time remains the same for both systems. From 20 ps onwards, the carrier densities decrease more slowly due to carrier recombination, and the net loss rate (the recombination rate minus the transfer rate from barriers into the wells) of the two systems is equal. In Figs. B-7a and B-7b, we show the Auger and the radiative recombination rates in the quantum wells, respectively. At the excitation density considered, Auger recombination is 20 times higher than spontaneous emission. One should note that the Auger coefficient used in our calculations is approximative, but such a high Auger coefficient although within generally accepted values is necessary to explain the time-resolved photoluminescence (PL) spectra (see the next section). Those results indicate that carrier recombination is mostly nonradiative. The rise time of the PL signal can be compared with the rise time of the recombination rate. This value is approximately 8 ps. However, caution should be exercised while interpreting this result, since in the semiclassical approach we consider that the energy levels in the quantum wells are not discretized such that the calculated rise time does not correspond exactly to the rise time of the ground-state luminescence.

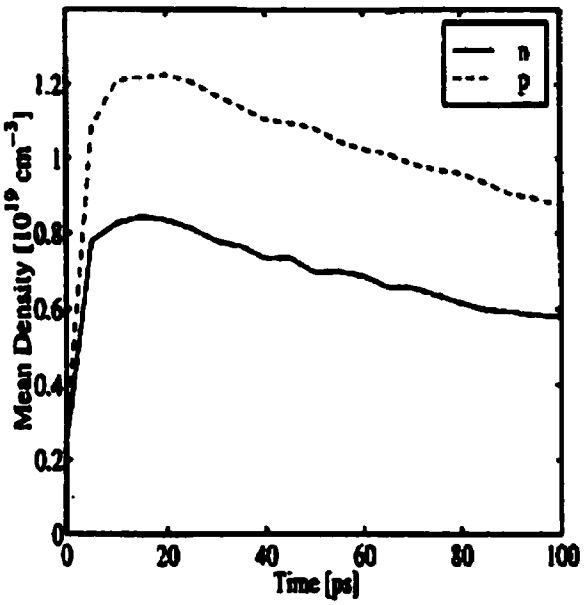


Figure B-5: Calculated mean-carrier densities vs time in the quantum wells; solid line, electrons; dashed line holes.

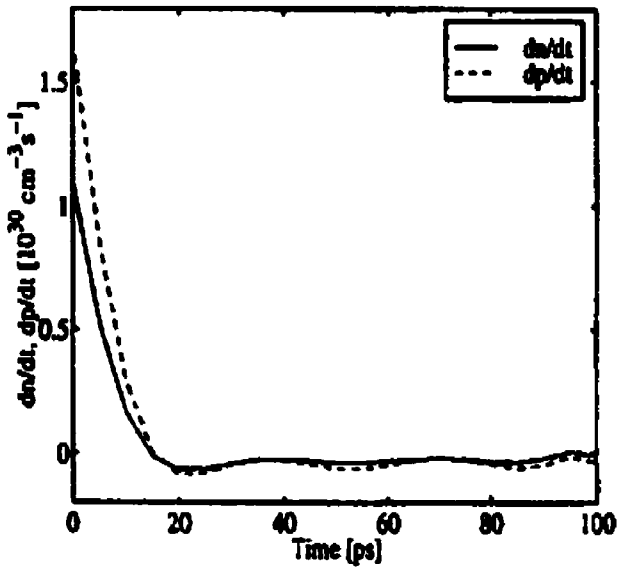


Figure B-6 : Time derivative of the carrier densities in the quantum wells, solid line, electrons; dashed line, holes for T = 77 K.

In fact, we will see in the next section that in the first 100 ps the photoluminescence signal proportional to the radiative recombination rate comes mostly from higher-energy electrons confined in the QWs.

C. Calculated and experimental TRPL spectra

The spontaneous emission rate per unit volume at energy E and position z can be written as [295]

$$I(E,z,t)=\frac{4\pi q^2 \bar{\mu} E}{m_0^2 \in c^3 h^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\rho_c(E')f_c(E',z,t)\times\rho_c(E'-E)f_v(E'-E,z,t)\left|M_{if}\right|^2 dE' \qquad (5)$$

Where m_0 is the free-electron mass, e is the electron charge, $\in$ is the permittivity of free space, $\bar{\mu}$ is the refractive index, and ρ_c and ρ_v are the densities of states in the conduction and valence bands, respectively. f (E, z, t) is the distribution function and $\left|M_{if}\right|^2$ is the matrix element between the conduction-band state of energy E' and the valence-band state of energy E - E'. The products ρf_c and ρf_v are calculated at each Monte Carlo simulation step up to 100 ps. Integrating Eq. 5 over z, we obtain the photoluminescence of each layer. In the integration, we assumed a constant matrix element where the energy dependency and k-selection rule were neglected.

In Figs. B-8a and B-8b, we present the calculated emission spectra from the wells and from the 1.25Q barriers, respectively. The emission from the barrier regions is strong in the first 50 ps, but decreases rapidly. After 50 ps, most of the signal is emitted by the wells. In the previous section, we showed that the cooling of the electrons in the active region is very slow. They are, therefore, at the higher QW energies. Hence, the QW signal comes from the recombination of these high-energy electrons with the better confined low-energy holes. As a result, the peak of the luminescence coming from the QWs is higher than the barrier gap energy (1 eV). Figure B-9 shows the Monte Carlo emission spectrum at 10 ps, from the QWs and from the 1.25Q barriers, obtained neglecting the c–sph and c–c interactions. Those results show that the barrier luminescence is weaker and the peaks are much sharper compared to the case when those interactions are not neglected.

In Figs. B-10 and B-11, we present the experimental TRPL spectra at two different excitation densities. We compare those results with the calculated spectra shown in Fig. B-12, obtained by adding the PL signal of each specific layer. One of the difficulties in simulating the experimental conditions is the uncertainty on the injected concentration. Furthermore, the recombination rates depend on the carrier density, and the Auger recombination coefficient is not well known.

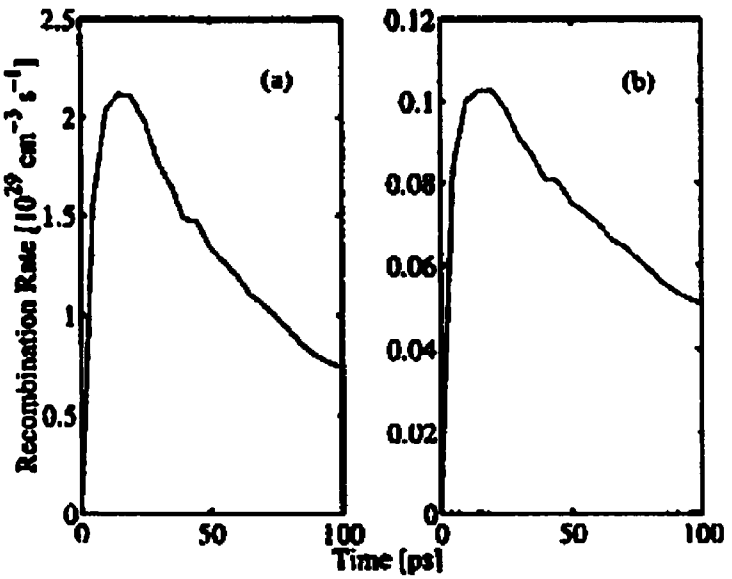


Figure B-7: Calculated recombination rates for T = 77 K; (a) Auger recombination and (b) spontaneous recombination.

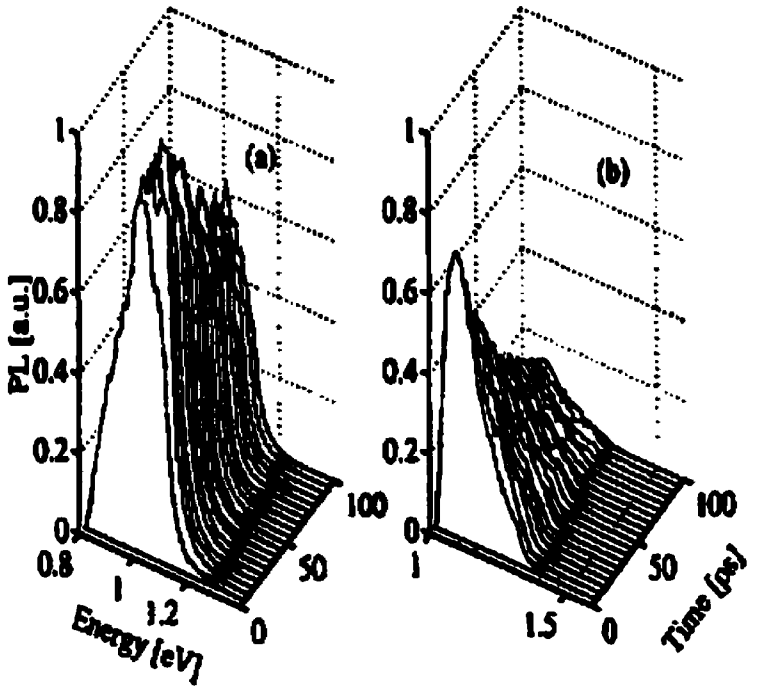


Figure B-8 : Calculated PL signal as a function of energy and time for T = 77 K, emitted from (a) quantum wells and (b) 1.25Q barriers.

The best fit to the our time-resolved spectra has been obtained by taking 4×10^{18} cm^{-3} as the excitation density at the surface and 1×10^{-28} cm^{-6} s^{-1} as the Auger coefficient. There are two striking differences between the experimental and the calculated spectra. (1) The peak at 1.42 eV in the experimental data comes from carrier recombination in InP. We do not see this peak in the calculated spectrum, because only a small fraction of the InP substrate is included in the simulation.

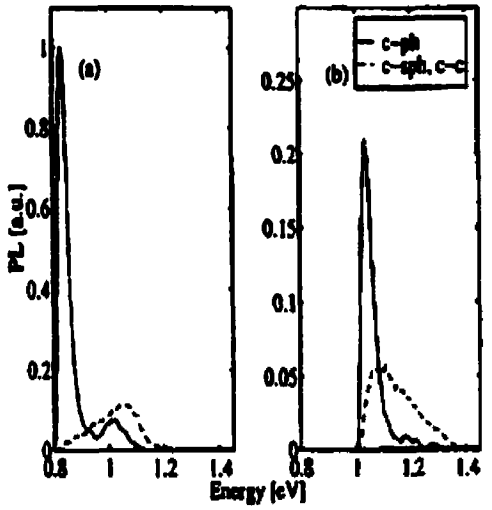


Figure B-9 : Calculated PL signal vs energy at 10 ps emitted from (a) quantum wells and (b) 1.25Q barriers; solid line, neglecting p-p effect; dashed line, with particle-particle effect. T = 77 K.

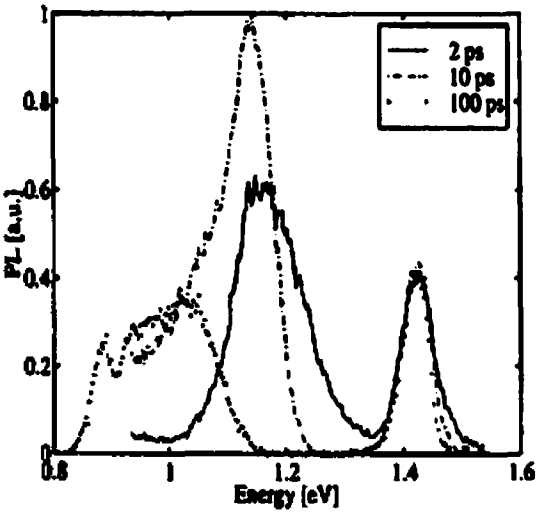


Figure B-10: Experimental PL spectra at 77 K, where the excitation power is 40 mW (1000 W/cm^2).

A computation which would include several microns of substrate would require a much larger number of superparticles, with an obvious cost in computation time. (2) The small peak at 0.87 eV comes from transitions between the first QW-confined states. In our

model, the quantum confinement of carriers is not taken into account, and this peak does not appear in the calculated spectrum. As calculated by a $k \bullet p$ method, there are 12 transitions near 0.86 eV, 8 transitions near 0.9, and 16 transitions near 0.94 eV, which contribute to the low-energy side of the experimental spectrum. The portion of the signal between 0.9 and 1.3 eV, which comes from the QW higher bands and the barrier luminescence, is well described by the semiclassical Monte Carlo approach. In Table I, we compare the full widths at half maximum of the peak near 1.1 eV obtained from Monte Carlo calculations with the experimental results for different times

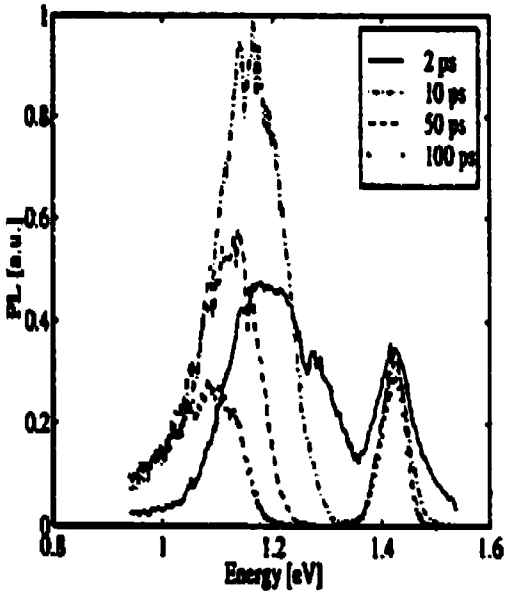


Figure B-11 : Experimental PL spectra at 77 K, where the excitation power is 125 mW.

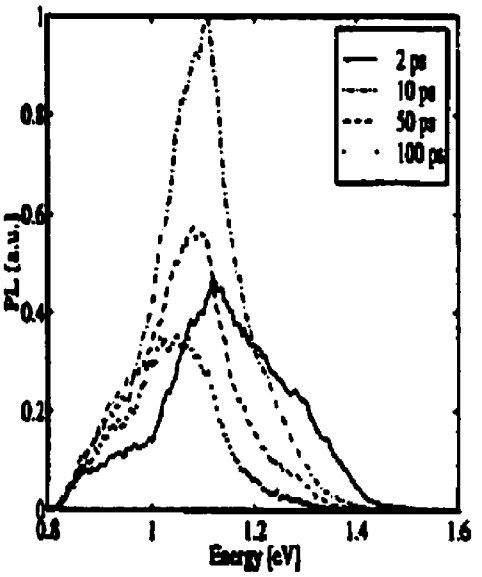


Figure B-12: Calculated PL spectra for T = 77 K

The increase of the full width at half maximum at 100 ps is caused by the overlap between the barrier and the QW photoluminescence signals. This is more apparent at 40 mW because the barrier luminescence is lower. For 125 mW, the difference with the Monte Carlo results is about 12%. The good agreement between the theoretical calculations and experimental data justifies the approximations we made and supports the interpretation that at very high carrier densities (1×10^{19} cm^{-3}) the carrier dynamics are well described by the semi-classical approach.

Table B-1: Full width at half maximum of the peak near 1 eV obtained from Monte Carlo calculations and experimental results for different times.

Delay (ps)	Monte Carlo (eV)	Expt. (125 mW) (eV)	Expt. (40 mW) (eV)
2	0.25	0.22	0.15
10	0.15	0.13	0.15
100	0.17	0.15	0.22

The results indicate that in the first 2 ps the high-energy photoexcited carriers cool down rapidly through phonon emission. Between 2 and 10 ps there is a net transfer of electrons and holes from the the step-like-confinement regions towards the active region barriers and to the QWs. As the carrier density in the QWs increases, the c–ph interactions are strongly screened and the c–c interactions become more important. As a result, most of the electrons are found in the QW region, but at energies higher than the QW depth. After 10 ps, we see the effect of carrier recombination mainly due to the Auger

recombination mechanism. Thus, the PL intensity decreases. Also, as the carriers recombine, the screening of the c–ph and c–c interactions is less important, the electrons cool down with phonon emission, and the maximum of the peak moves towards lower energies. It should be noted that in the recombination model we took, the energy dependency of the coefficients is neglected. Thus, the actual Auger coefficient for the carriers in the ground state may be different from the value we chose in the simulation.

5. Conclusion

In summary, we presented an ensemble Monte Carlo method for the study of the carrier dynamics and photoluminescence in an InGaAsP/InP MQW structure. The spontaneous and Auger recombinations were included in the model. Auger recombination is found to be the primary carrier recombination mechanism. The photoluminescence spectra calculated using the simulation are in good agreement with the experimental results, especially in the barriers and at the higher energies in the QWs. We showed that at the high carrier densities found in the active region of the structure under investigation, the c–sph and c–c interactions have a significant effect on the carrier dynamics. Especially the e–sph interaction is found to be responsible for the slow cooling of the electrons in the QWs. Therefore, the PL signal comes mostly from the recombination of the high-energy electrons and low-energy holes in the QWs, in the time span between 2 and 100 ps, while the PL signal coming from the active region barriers is important in the first 50 ps but decreases rapidly.

Acknowledgments

The authors thank the National Sciences and Engineering Research Council of Canada for financial support. The semiconductor materials were provided by Nortel Technologies, Ottawa, Canada.

Références

See thesis bibliography, starting at the page # 200
Voir la bibliographie de la thèse, à la page n° 200.

ANNEXE C

Carrier dynamics in InGaAsP MQW laser structures

C. Rejeb [a,*], R. Maciejko [a], D. Morris [b] and T. Makino [c]

a) Optoelectronics Laboratory, Department of Engineering Physics, École Polytechnique P.O. Box 6079, Station «Centre-ville», Montréal (Québec), Canada H3C 3A7.

b) Centre de Recherche en Physique du Solide, Département de physique, Université de Sherbrooke, Sherbrooke (Québec), Canada, J1K 2R1.

c) Nortel Technologies Inc. P.O. Box 3511, Sta. C., Ottawa (Ontario), Canada, K1Y 4H7.

Article publié dans

Proceedings of the SPIE, The International Society for Optical Engineering, vol. **3491**, pp. 1065-1070, 1998.

International Conference on Applications of Photonic Technology III

Closing the Gap between Theory, Development, and Applications

Ottawa, Ontario, Canada, June, 1998

Editor(s): Lampropoulos, George A.; Lessard, Roger A.

Publié: décemebre 1998

*Present address : Nortel Networks, 1285 Baseline Rd, P.O. Box 04577C04, Ottawa (Ontario). Canada K2C 0A7.

Abstract

We investigate vertical carrier transport, carrier relaxation and capture in three multiple-quantum-well lasers structures of $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ emitting at 1.3 and 1.55 μm at room temperature using time resolved photoluminescence. In the initial regime following the excitation, high effective carrier temperatures T_C different from the lattice temperature T_L = 77 K are reported. A significant signature of transport and capture is observed with characteristic times of ~ 10 ps and ~ 12 ps respectively.

Key words : Multiple-quantum-well lasers, $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$, time resolved photoluminescence, ultrafast carrier dynamics, vertical carrier transport, carrier capture.

1. Introduction

One witnesses a sustained effort in improving the high-speed performance of semiconductor lasers and amplifiers based on the quaternary alloy $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$. Those devices are used for optical fiber communications systems, because they operate at the wavelengths of zero-dispersion (1.3 μm) or lowest loss (1.55 μm) of silica optical fibers. The major physical processes that set the ultimate limitation for the maximum modulation bandwidth in multiple-quantum-well (MQW) lasers are : (a) the differential gain and the photon lifetime in the cavity which are determined by material properties and device structure [273]; (b) the optical nonlinear gain coefficient which is caused by

spectral hole burning and the gain saturation effect [15, 17]; (c) carrier transport [25, 26], including carrier tunneling between wells [27]; carrier capture and transfer between wells and barriers [33]; (d) the dynamic heating caused by injection, stimulated and spontaneous emission [44], free-carrier absorption [42, 44] and Auger processes [49], resulting in (e) hot carriers and hot phonons [41]. The last processes are not well understood.

In this work, vertical carrier transport, carrier relaxation and capture in MQWs are investigated using time-resolved photoluminescence (TRPL) spectroscopy [95].

2. Experiment

We investigate carrier dynamics in three $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ MQW lasers structures. Those structures were grown on n-doped ($2\times10^{18}cm^{-3}$) InP substrates by MOCVD. They consist of a 1.5 μm n-doped (2×10^{18} cm^{-3}) InP buffer layer (not shown in the figures), followed by a first step-like n-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP confinement region. The active region of structure A contains four 1.5% compressively strained undoped InGaAsP QW's emitting at λ = 1.55 μm at room temerature (RT). The structures B and C contain 8 and 12 undoped 1 % compressively strained InGaAsP QW's respectively, emitting at 1.3 μm at RT. Those QW's are separated by p-doped (4×10^{17} cm^{-3}) InGaAsP barriers. The active region is followed by a step-like p-doped (4×10^{17} cm^{-3}), unstrained InGaAsP

second confinement region. Finally, the structures end with 700 Å InP cladding layer. A schematic of the energy band diagram and many other parameters are given in Figure C-1 and Figure C-2. For the TRPL experiments, a pulsed Ti-sapphire laser (λ = 740 nm, ~100 fs, 82 MHz) is used as an excitation source. An up-conversion detection technique with subpicosecond resolution and a GaAs photomultiplier tube were used for signal detection. The carrier dynamics in our MQWs are studied as a function of excitation density (ED) and lattice temperature.

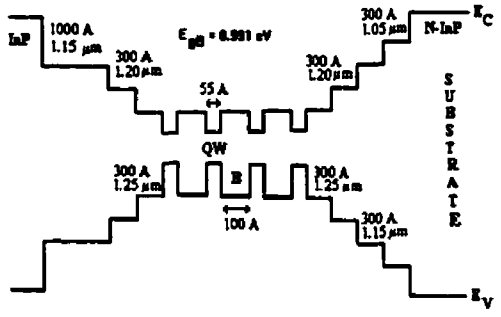


Figure C-1 : Schematic band diagram of A

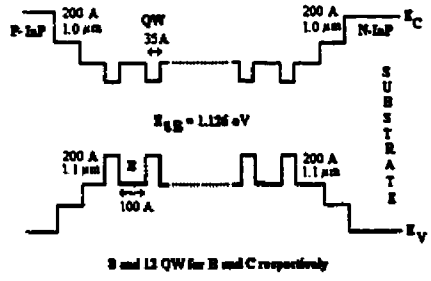


Figure C-2 : Schematic band diagram of B and C.

3. Results and discussion

Typical TRPL spectra of structures A, B and C at six different delays after the excitation pulse are shown in Fig. C-3, C-4 and C-5 respectively. The high energy peak, at 1.42 eV, comes mainly from carrier recombination in the InP. The broad PL band (at low delay times) corresponds to the emission from the step-like confinement region and the InGaAsP barriers. The low-energy peaks at 0.86 eV (for structure A) and ≈1 eV (for

structure B) correspond to the QWs ground state transitions. The gradual increase of the low-energy peaks as a function of time indicates a net transfer of electrons and holes from the step-like confinement regions towards the active region barriers and finally to the QW's.

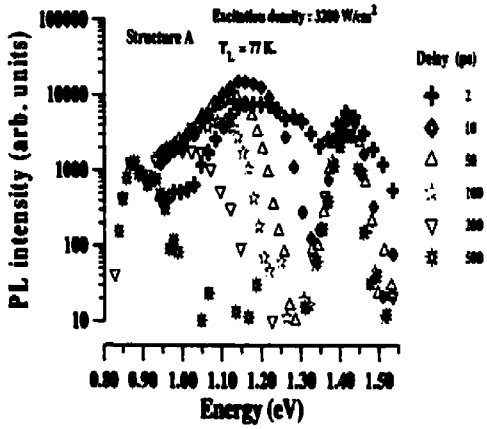


Figure C-3 : TRPL spectra of A.

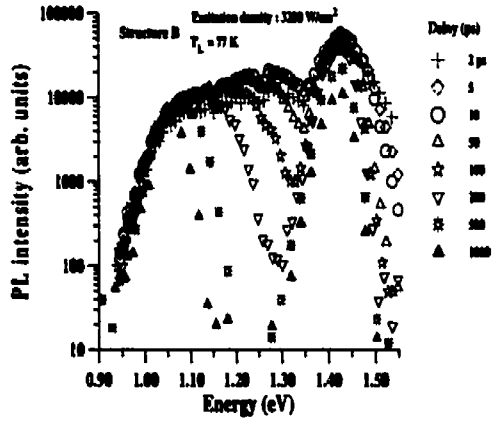


Figure C-4 : TRPL spectra of B.

Excitation with 1.67 eV laser pulses creates hot carriers in all the layers of the structures. In fact, the luminescence in the high energy tail of the InP peak arises from the recombination of hot carriers. The corresponding effective carrier temperature (T_C) can be inferred from the exponential energy dependency of the intensity [209]:

$$I(h\nu) \propto \nu^2 (h\nu - E_g)^{1/2} \exp\left[\frac{-(h\nu - E_g)}{k_B T_C}\right]$$

where hv is the photon energy, E_g (T_L=77K) = 1.4206 eV is the InP band gap energy [210] and k_B is the Boltzmann constant.

The time-resolved PL spectra show that the high-energy tail of the InP peak is always exponential (even for delay times as short as 2 ps). This clearly indicates that the carrier-carrier thermalization time is very fast (this time is in fact on the order of our time resolution which is ≈200 fs). In the initial regime following the excitation, it is found that T_C is as high as 275 K (425 K for B).

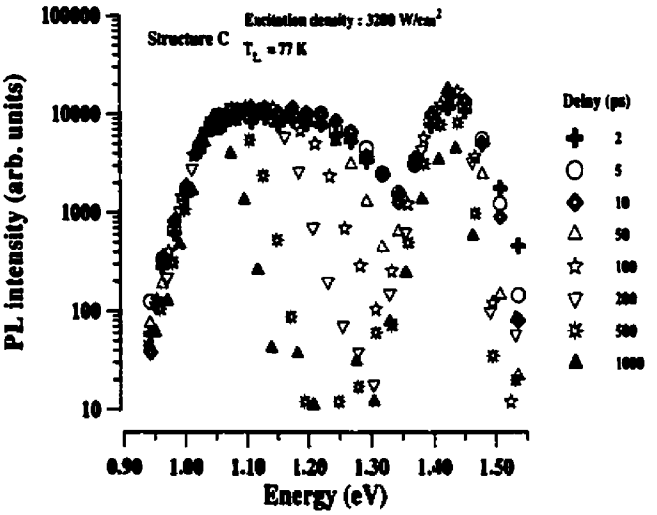


Figure C-5 : TRPL spectra of C.

Tables C-1, C-2 and C-3 summarize the evolution of T_C with the delay time following the pulsed laser excitation for different ED. The effective carrier temperature decreases as a function time due to well-known phonon relaxation mechanisms. The different values of T_C determined at short times may have two origins : 1) the number of carriers excited directly in the InP buffer layer is higher for structures B and C because the overall

thickness of the structure is smaller, 2) band-filling and hot carrier/phonon effects in the confinement region is less important for structure A because the thickness of this region is wider than those of structures B and C.

Table C-1: Time evolution of T_C in the structure A for different excitation densities and $T_L = 77K$.

Delays (ps)	2	5	10	50	100	200	500	1000
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 3200 W/cm^2	275	215	175	130	120	90	85	85
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 1000 W/cm^2	210		155		95		90	85

Table C-2: Time evolution of T_C in the structure B for different excitation densities and $T_L = 77K$.

Delays (ps)	2	5	10	50	100	200	500	1000
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 3200 W/cm^2	425	370	325	210	180	150	115	105
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 1000 W/cm^2	280		220		140		110	95

Table C-3: Time evolution of T_C in the structure C for different excitation densities and $T_L = 77K$.

Delays (ps)	2	5	10	50	100	200	500	1000
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 3200 W/cm^2	330		280	185	165	140	120	115
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 1250 W/cm^2	265	235	210	145	140	125	120	110
$(T_C \pm 10)$ K ED ≈ 500 W/cm^2	200		170		125		100	90

Figures C-6 and C-7 show the temporal evolution of the PL signal for different transitions. The different detection energies in Fig. C-6 correspond to the QW ground state transition at 0.88 eV, the first QW excited state transition at 0.93 eV and the InP ground state transition at 1.42 eV. The time-resolved PL signal of Fig. C-7 corresponds to different transitions in the confinement region. The fast rise time of the QW PL intensity (≈25 ps) and the short decay time of the confinement region (<75ps) indicate an efficient carrier relaxation and capture by the QW's. Results of the decay times, determined from the exponential behavior at long delay times, are summarized in Table C-4.

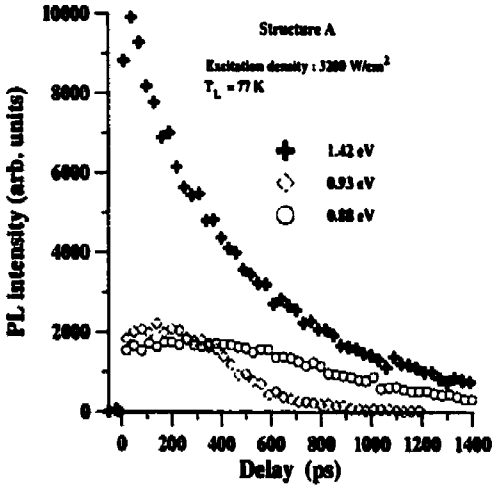


Figure C-6 : Temporal evolution of the InP, barriers and QW's luminescence.

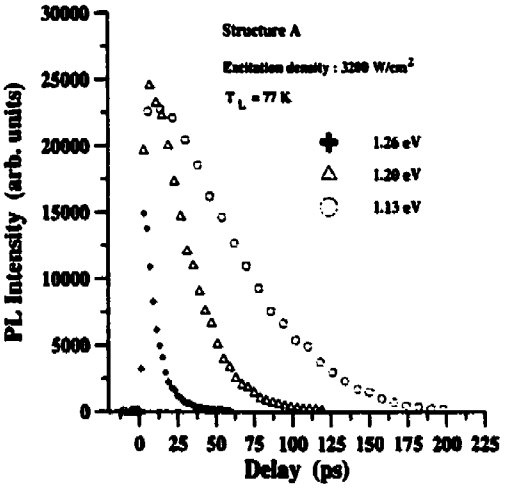


Figure C-7 : Temporal evolution of the confinement region luminescence.

The shorter carrier lifetime observed for the step-like confinement region transition shows that this layer is effectively feeding in carriers the active region of the structure. The long

PL decay time (>1ns) observed at the QW ground state energy is a signature of a high QW structural quality.

Table C-4 : Decay constants of some bands in the structure A
Excitation density ≈ 3200 W/cm^2 and T_L = 77 K.

Band Energy (eV)	1.26	1.20	1.13	0.93	0.88
Decay constant (ps)	8 ± 2	20 ± 2	50 ± 5	350 ± 25	1200 ± 100

Additional information on the dynamics of carrier relaxation can be obtained from the PL short-time transients measured at different detection energies as shown in figures C-8 and C-9. The results of the PL rise time analysis are summarized in Table C-5. The PL rise times continually increase with decreasing the PL detection energies. They vary from ≈ 3 ps in the confinement regions to ~ 13 ps in the active region barriers and to ~ 25 ps in the QW's. The first difference of ~ 10 ps can be attributed to the electron and hole transport time from the InP layer to the vicinity of the first QW. A comparison of the PL decay times of the confinement region emission lines (in Table C-4) and the PL rise time of the QW transitions (Table C-5) further confirms that the initial photocarrier profile favors the diffusion of carriers through the confinement region towards the QWs. On the other hand, the difference between PL rise times of the active region barrier transition and the QW transition (≈12 ps) can be interpreted as the carrier capture and relaxation time in the QW's since these barriers are thin enough for carrier transport therein to be neglected

[65]. This capture and relaxation time is in good agreement with that of 14 ps reported for a 0.83 % compressively strained 1.5 μm-InGaAsP MQW optical amplifier [199] (sample #5).

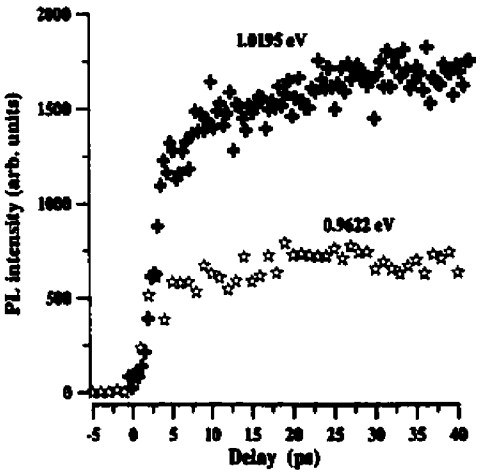


Figure C-8 : Rise times of some bands in A. ED ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K.

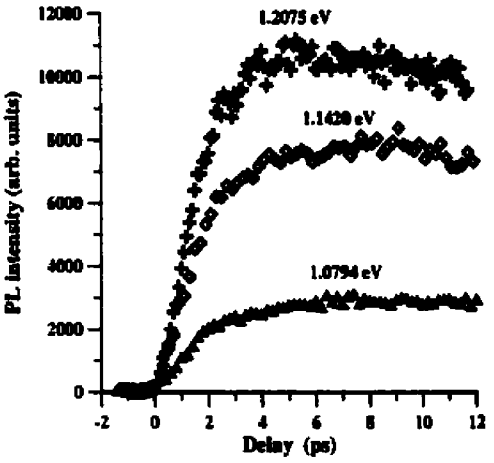


Figure C-9 : Rise times of some bands in A. ED ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K.

Table C-5 : Rise times of some bands observed in structure A. Excitation density ≈ 5000 W/cm^2 and T_L = 18 K.

Band Energy (eV)	1.142	1.207	1.079	1.019	0.962	0.875
Rise Time (ps)	6 ± 0.5	3 ± 0.5	7 ± 0.5	10.5 ± 2	18 ± 2	25 ± 2

This relatively long QW rise time may also be partly explained by the fact that, in our experiments, the initial electron excess energy is higher than (or comparable to) the band energy separation between the L and Γ valleys ($\Delta_{\Gamma L}$ = 0.56 eV, obtained from

interpolation in the InP-InGaAsP systems) [192]. Further experiments with variable excitation energy will allow us to quantify the relative contribution of each process to the PL rise time of the QW ground state transition. For example, in the situation where carrier diffusion in the confinement region can be neglected (by exciting below its bandgap energy), we can make the following remarks about the nature of the relaxation mechanisms. Owing to the fact that our active layer is undoped, the QW PL intensity (which is proportional to the product of electron and hole densities) will increase with a characteristic time corresponding to the slower (electron or hole) carrier relaxation time. We can argue that the relaxation rate is higher for holes because of their larger effective masses (assuming parabolic bands, we find effective masses of $m_e = 0.053\ m_0$ and $m_{hh} = 0.46\ m_0$) [192]. There is some reported experimental evidence for this fast hole relaxation [296, 297]. Based on the last comments, it is reasonable to think that, under such excitation conditions, our observed PL QW rise time will correspond mainly to the electron relaxation time. As far as carrier capture is concerned, it is important to note that hole capture tends to accelerate the electron capture process (this phenomena is called ambipolar capture in the literature [298, 299]). Further experiments combined with Monte-Carlo simulations are needed in order to quantify and to get a better understanding of the different mechanisms involved in these carrier transport and relaxation processes which take place in real MQW laser structures.

Acknoledgments

We thank NSERC for financial support for this project.

Références

See thesis bibliography, starting at the page # 200

Voir la bibliographie de la thèse, à la page n° 200.