



HAL
open science

Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs

Sabine Laurent

► **To cite this version:**

Sabine Laurent. Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004. Français. NNT: . tel-00007028

HAL Id: tel-00007028

<https://theses.hal.science/tel-00007028>

Submitted on 4 Oct 2004

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

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

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Sciences des matériaux

présentée par

Sabine LAURENT

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

Sujet de la thèse :

Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs

Soutenue le 30 septembre 2004 devant le jury composé de :

| | |
|--------------------|-----------------------|
| M. Yves GULDNER | Président du jury |
| Mme Maria CHAMARRO | Rapporteur |
| M. Kuntheak KHENG | Rapporteur |
| M. Thierry AMAND | Examineur |
| M. Paul VOISIN | Directeur de thèse |
| M. Olivier KREBS | Co-Directeur de thèse |

Remerciements

- ◆ Je remercie vivement Paul Voisin pour m'avoir accueillie dans son groupe et avoir soutenu tout au long de la thèse nos orientations de recherche. Paul a apporté à de multiples reprises par ses connaissances scientifiques et ses encouragements un nouveau souffle aux travaux entrepris et une vision éclairante des résultats expérimentaux. Il a également été d'une aide précieuse dans mes choix d'orientation de carrière et a apporté au jour le jour par son sourire et sa bonne humeur un esprit de travail dynamique et chaleureux.
- ◆ Je remercie immensément Olivier Krebs qui a démontré pendant ces trois années de remarquables qualités de directeur de thèse. Toujours à l'écoute et disponible, d'une patience inébranlable, il a été tout au long de la thèse un fort soutien tout en prenant soin de me laisser mener ma propre démarche de recherche. Ses capacités d'analyse couplées à un savoir scientifique et des compétences expérimentales vastes m'ont permis d'avancer rapidement dans la recherche, de comprendre bon nombre de résultats expérimentaux et d'acquérir de nombreuses connaissances.
Faites votre thèse dans cette équipe!
- ◆ Je remercie Maria Chamarro et Kuntheak Kheng de m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs de cette thèse et d'avoir accepté malgré le court délai de lire ce manuscrit.
- ◆ Un grand merci également à Yves Guldner et Thierry Amand pour m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury et pour avoir mené ensemble des discussions tout à fait enrichissantes sur la physique des boîtes dopées, entre autres.

- ◆ Un grand merci à Benoit Eble avec lequel je partage les résultats obtenus. J'ai grâce à lui passé dans la bonne humeur bien des heures à regarder la polarisation de quinze milles raies d'excitons chargés.
- ◆ Un grand merci également à Aristide Lemaitre sans lequel toute cette étude n'aurait pas été possible. Ses compétences multiples qui vont de l'épitaxie à l'optique de boîtes uniques nous ont permis de développer très rapidement les expériences sur les systèmes à contrôle de la charge.
- ◆ Je remercie Xavier Marie et son équipe pour avoir mené ensemble ce travail constructif sur la dynamique du spin dans les boîtes dopées et plus particulièrement Bernard Urbaszek pour son aide précieuse en matière de technologie de diodes Schottky.
- ◆ Un grand merci à toutes les personnes de mon équipe : Jacqueline Bloch, Pascale Sénellart, Karine Meunier, Anne Talneau, Bernard Sermage, Guillaume Guirleo, Julien Hours, Mathieu Perrin et Emmanuelle Peters pour leur soutien, leur aide et pour le plaisir de partager la table avec eux !
- ◆ Je tiens à remercier très particulièrement Laurent Couraud, Laetitia Leroy, Nicolas Allemandou, Laurent Merzeau et Gilbert Chanconie qui m'ont bien aidé pour construire un nombre incalculable d'échantillons et toute une salle d'expérimentation !
- ◆ Un grand merci à Isabelle Sagnes, Sophie Bouchoule et Guillaume Saint-Girons pour leur savoir faire et leur aide si indispensable en matière de technologie.
- ◆ Merci bien à Nathalie Bardou et à Kamel Merghem pour m'avoir formé en salle blanche ainsi qu'à l'ensemble de l'équipe de technologie sans laquelle le travail en salle blanche serait impossible.
- ◆ Je remercie Jean-Yves Marzin et Marcel Bensoussan pour avoir accepté de financer ce projet de recherche.
- ◆ Un grand merci à l'ensemble des personnes du laboratoire. Bien des personnes m'ont aidé spontanément dans de nombreuses circonstances et ont fait de mon séjour au LPN une étape des plus agréables et constructives.

- ◆ Merci Capitaine d'avoir partagé cette épreuve qu'est la thèse avec moi
- ◆ Merci maman d'avoir fait l'éloge de cette voie. Tu ne t'es pas trompée!

Introduction

Le spin électronique dans les semi-conducteurs fait actuellement l'objet de nombreuses investigations. Outre les perspectives de développer de nouveaux composants à base de semiconducteurs magnétiques, le spin pourrait également constituer l'élément de base d'un futur ordinateur quantique. C'est en effet, en tant que système quantique à 2 niveaux, l'archétype de ce que l'on nomme couramment un *quantum-bit* (ou *qubit*). Une des limites physiques d'un tel ordinateur utilisant l'intrication d'un grand nombre de ces qubits, provient de la perte de la cohérence d'un tel état, et donc en premier lieu de la décohérence d'une simple superposition des états *up* et *down* d'un seul de ces qubits. La problématique actuelle est donc d'obtenir un système dans lequel ce temps de cohérence soit suffisamment long pour permettre de futures manipulations quantiques.

On distingue généralement deux temps caractéristiques pour décrire l'évolution d'un spin préparé dans une superposition cohérente des états *up* et *down* :

- ◆ Le temps T_2 est le temps, qui traduit la perte de cohérence de la phase existant entre les deux composantes *up* et *down* d'un spin.
- ◆ Le temps T_1 est le temps de relaxation longitudinal. Physiquement, il se distingue du temps T_2 dès lors qu'un champ magnétique est appliqué, levant la dégénérescence entre les états *up* et *down*. Il traduit alors le temps de thermalisation entre les deux sous-niveaux Zeeman, c'est à dire le renversement de la projection selon l'axe du champ du spin. Par la suite, on emploiera, même en absence de champ magnétique appliqué, la dénomination "temps de relaxation"

pour décrire ce temps caractéristique.

Dans ce contexte, les systèmes de boîtes quantiques de semiconducteur, chargées avec un seul électron se présentent comme des candidats très prometteurs. Ces structures, de part leur dimensions nanométriques, ont en effet la propriété remarquable de posséder une structure électronique discrétisée, ce qui supprime les principaux mécanismes responsables de la relaxation du spin dans les semi-conducteurs. On peut donc s'attendre à ce que le temps de relaxation du spin dans une boîte soit plus long que les 10 à 100ps habituellement observées dans les semi-conducteurs massifs.

L'étude du temps de relaxation de spin d'un électron confiné dans une boîte quantique, et plus généralement de complexes excitoniques chargés est au coeur de ce travail de thèse. L'une des premières mesures de ce temps a été effectuée au sein de l'équipe de O. Krebs et P. Voisin par S. Cortez en 2001.

En étudiant la polarisation de la luminescence d'un ensemble de boîtes quantiques d'InAs dopées n et contenant *a priori* un seul électron, ils ont observé un temps de relaxation du spin d'environ 15 ns par une mesure de type pompe sonde. Cette thèse, en démarrant en septembre 2001 s'inscrit donc dans la continuité de ce travail. Elle peut être divisée en quatre parties qui constitueront les quatre chapitres du présent manuscrit.

- ◆ La première partie présente toutes les notions théoriques nécessaires à la compréhension des observations expérimentales qui suivront. Elle explique notamment comment l'orientation optique du trion permet d'étudier le spin électronique.
- ◆ La seconde partie reprend les mesures effectuées par S. Cortez et montre des mesures complémentaires réalisées en vue d'en vérifier certaines des conclusions. Cette seconde partie mettra en évidence des difficultés d'interprétation des résultats qui sont inhérentes à la mesure sur ensemble de boîtes et qui ont motivé notre choix de travailler par la suite sur boîtes uniques.
- ◆ La troisième partie présente donc les principales propriétés du système de boîtes à modulation de charge, lequel système permet de travailler sur boîtes uniques

tout en contrôlant le nombre d'électrons présents dans chaque boîte.

- ◆ La quatrième partie expose enfin les résultats obtenus sur l'orientation optique des excitons chargés (trions) et les conclusions que ces études ont apportées sur le temps de relaxation du spin dans les boîtes quantiques.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| 1 Niveaux électroniques et mécanismes de relaxation du spin dans les boîtes quantiques d'InAs | 15 |
| 1.1 Descriptif d'un système de boîtes quantiques | 16 |
| 1.2 Structure électronique des boîtes quantiques | 17 |
| 1.2.1 Structure de bande de GaAs massif | 17 |
| 1.2.2 La couche de mouillage : un puits quantique sous forte contrainte biaxiale | 23 |
| 1.2.3 Structure électronique des boîtes | 25 |
| 1.3 Relaxation de spin des électrons | 30 |
| 1.3.1 Mécanismes agissant dans les structures 3D ou 2D | 30 |
| 1.3.2 Action du terme de Dresselhaus dans les boîtes | 33 |
| 1.3.3 Interaction hyperfine | 34 |
| 1.3.4 Action d'un champ magnétique | 38 |
| 1.4 Orientation optique | 38 |
| 1.4.1 Règles de sélection optique | 39 |
| 1.4.2 Application à la couche de mouillage | 43 |
| 1.4.3 Application aux boîtes quantiques | 44 |
| 1.4.4 Rôle de l'anisotropie | 44 |
| 1.4.5 Cas des boîtes chargées | 47 |
| 2 Polarisation de luminescence d'un ensemble de boîtes dopées n | 49 |
| 2.1 Observation expérimentale d'un taux de polarisation négatif | 49 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 2.1.1 | Photoluminescence résolue en polarisation | 49 |
| 2.1.2 | Mesures résolues en temps | 51 |
| 2.2 | Interprétation | 53 |
| 2.2.1 | Structure fine du trion chaud | 54 |
| 2.2.2 | Dynamique de recombinaison du trion chargé | 56 |
| 2.2.3 | Généralisation | 60 |
| 2.3 | Mémoire de spin | 68 |
| 2.3.1 | Observations expérimentales | 68 |
| 2.3.2 | Discussion | 74 |
| 2.4 | Excitation intra-boîtes | 75 |
| 2.5 | Influence d'un champ magnétique longitudinal | 80 |
| 2.6 | Conclusion | 81 |
| 3 | Boîtes quantiques à modulation de charge | 83 |
| 3.1 | Conception d'une diode schottky | 83 |
| 3.1.1 | Principe de la modulation de charge | 83 |
| 3.1.2 | Le procédé technologique | 87 |
| 3.1.3 | Caractéristiques I(V) et C(V) | 91 |
| 3.2 | Importance de l'effet tunnel sur la durée de vie des porteurs | 95 |
| 3.2.1 | Echappement des porteurs par effet tunnel | 95 |
| 3.2.2 | Compétition entre photoluminescence et photocourant | 97 |
| 3.3 | Photoluminescence de boîtes uniques | 100 |
| 3.3.1 | Aspects expérimentaux | 100 |
| 3.3.2 | Observation du trion | 102 |
| 3.3.3 | Observation de X^{2-} et de $2X^{-}$ | 106 |
| 3.3.4 | Observation de X^{+} | 113 |
| 3.4 | Bilans | 115 |
| 3.4.1 | Phases successives du remplissage des boîtes | 115 |
| 3.4.2 | Structure de l'échantillon | 118 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 4 | Polarisation de luminescence des excitons chargés de boîtes uniques | 119 |
| 4.1 | Excitation dans la couche de mouillage | 119 |
| 4.2 | Excitation intraboîte | 121 |
| 4.2.1 | Evolution du taux de polarisation circulaire de luminescence en fonction de la tension | 121 |
| 4.2.2 | Etude de l'influence de l'énergie d'excitation | 141 |
| 4.3 | Mesures résolues en temps | 145 |
| 4.4 | Conclusion | 151 |
| | Bibliographie | 155 |

Chapitre 1

Niveaux électroniques et mécanismes de relaxation du spin dans les boîtes quantiques d'InAs

Ce chapitre permet d'introduire toutes les notions nécessaires à la compréhension des observations expérimentales qui vont suivre. Après une courte présentation de la nature des boîtes quantiques, il rappelle la démarche utilisée pour calculer les états propres des électrons et des trous dans un semiconducteur massif tout d'abord puis dans les structures qui nous intéresseront par la suite : la couche de mouillage et les boîtes. Ce rappel nous permettra tout d'abord de justifier en quoi le temps de relaxation des spins dans les boîtes devrait être plus long que celui observé dans les hétérostructures ou les matériaux massifs. Il nous permettra ensuite de comprendre comment des expériences d'optique permettent d'étudier l'orientation du spin dans les semi-conducteurs. Il justifiera enfin différentes hypothèses de travail faites pendant toute la suite de cette thèse.

1.1 Descriptif d'un système de boîtes quantiques

Les systèmes de boîtes quantiques autoorganisées, qui ont été étudiés au cours de cette thèse ont tous été obtenus par épitaxie par jet moléculaire dans la direction $(001) = (z)$ d'une couche d'InAs sur GaAs. Le désaccord de maille (7%) entre les deux matériaux ne permet la croissance d'une couche bidimensionnelle (2D) d'InAs que sur une épaisseur faible inférieure à deux monocouches. Au delà, la contrainte accumulée dans la couche devient trop forte et on observe la formation d'îlots tridimensionnels d'InAs. Ce mode de formation de boîtes est celui de Stranski-Krastanov. Une fois recouverts d'une seconde couche de GaAs, ces îlots prennent la forme d'une lentille (voir graphe 1.1), d'une épaisseur selon l'axe de croissance d'environ $3nm$ et de dimensions latérales environ $20nm$. Ils sont appelés boîtes quantiques du fait que le système GaAs/InAs forme un puits de potentiel de type I dans les trois directions de l'espace (Le gap d'InAs non contraint est de $0.418eV$ contre $1.51eV$ pour GaAs à $4K$). La structure électronique d'un tel système fait apparaître une discrétisation des niveaux d'énergie qui traduit le confinement des électrons. L'énergie d'ionisation varie entre $60meV$ et $200meV$ et est donc largement supérieure à l'énergie thermique à basse température. L'électron est donc piégé. On peut représenter schématiquement l'énergie du système comme sur la figure 1.1. La fine couche d'InAs sera appelée la couche de mouillage. Son gap est d'environ $1.41eV$ à $4K$ du fait des fortes contraintes.

Lors de la croissance, les boîtes se répartissent de manière aléatoire. Leur densité peut être en partie contrôlée. Elle se situe entre 10^9cm^{-2} et quelques $10^{10}cm^{-2}$. On peut ainsi obtenir par exemple des échantillons dits "zone frontière" et composés d'un seul plan de boîtes dont la densité va varier entre les deux valeurs précédentes sur une distance de 1 à 2cm. Ce type d'échantillons permet d'étudier optiquement un faible nombre de boîtes. En excitant, grâce à la focalisation d'un faisceau laser, une surface d' $1\mu m^2$ seulement, on pourra ainsi observer le signal de luminescence réémis par une seule boîte.

Ce mode de croissance ne permet pas en revanche de concevoir des boîtes qui ont

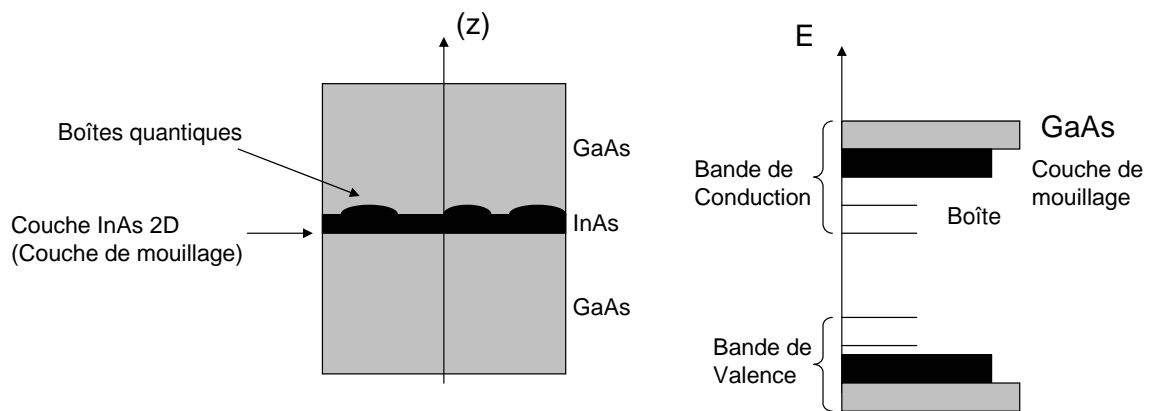


FIG. 1.1 – Croissance auto-organisée de boîtes d’InAs sur GaAs

toutes la même forme ni les mêmes dimensions. La dispersion de taille est de l’ordre de 15% ce qui provoque une dispersion inhomogène des niveaux d’énergies.

1.2 Structure électronique des boîtes quantiques

Cette section rappelle tout d’abord les principales caractéristiques de la structure électronique de GaAs, en vue de comprendre celles de la couche de mouillage et des boîtes. Cette étude nous permettra de justifier plusieurs hypothèses faites par la suite et d’introduire tous les éléments nécessaires à la compréhension des deux parties suivantes.

1.2.1 Structure de bande de GaAs massif

Dans un semi-conducteur massif, une assez bonne description de la structure électronique au voisinage du gap du matériau peut s’obtenir en résolvant par la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$ l’équation aux valeurs propres de l’hamiltonien à une particule suivante (Voir [1] et [2])

$$H\Phi = \left(\frac{p^2}{2m_0} + V(\vec{r}) + H_{SO} \right) \Phi = E\Phi$$

Cet hamiltonien contient en plus du terme d'énergie cinétique et d'énergie potentielle le terme de couplage spin orbite :

$$H_{SO} = \frac{\hbar}{4m_0^2c^2}(\vec{\sigma} \times \nabla V) \cdot \vec{p}$$

où $\vec{\sigma}$ sont les matrices de Pauli.

La périodicité du crystal dans les trois directions de l'espace nous permet d'utiliser le théorème de Bloch pour écrire la fonction d'onde solution sous la forme d'une onde plane :

$$\Phi(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} u_{n,\vec{k}}(\vec{r})$$

où les $u_{n,\vec{k}}(\vec{r})$ sont les fonctions dites de Bloch, périodiques, de même période que celle du réseau, n est l'indice d'une bande et \vec{k} le vecteur d'onde qui peut être choisi dans la première zone de Brillouin.

L'équation se réécrit alors sous la forme suivante :

$$\left(H + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar}{m_0} \vec{k} \cdot (\vec{p} + \frac{\hbar}{4m_0c^2} (\vec{\sigma} \times \nabla V)) \right) u_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{k}} u_{n,\vec{k}}$$

Soit donc :

$$(H(\vec{k} = \vec{0}) + W(\vec{k})) u_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{k}} u_{n,\vec{k}}$$

Cette équation admet pour $\vec{k} = \vec{0}$ un ensemble de solutions orthonormées $u_{m,\vec{0}}$, de valeurs propres associées $E_{m,\vec{0}}$. La théorie des groupes (références [3] et [1]) permet de connaître la symétrie de ces états propres $u_{m,\vec{0}}$ et la dégénérescence de chacune des bandes en $\vec{k} = \vec{0}$; les études expérimentales permettent quant à elles de donner des valeurs numériques aux énergie $E_{m,\vec{0}}$ et d'en déduire ainsi la position respective de chaque bande. Cet ensemble $u_{m,\vec{0}}$ constitue d'après le théorème de Kohn-Luttinger une base de travail et on peut donc décomposer $u_{n,\vec{k}}$ selon cette base :

$$u_{n,\vec{k}} = \sum_m c_m(\vec{k}) u_{m,\vec{0}}$$

Le calcul des coefficients s'effectue en considérant $W(\vec{k})$ comme un terme perturbatif, ce qui nous intéresse étant en effet de déterminer la structure électronique

au voisinage du gap du matériau en $\vec{k} = \vec{0}$. On obtient donc par cette méthode :

$$u_{n,\vec{k}} = u_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar}{m_0} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle u_{n,\vec{0}} | \vec{k} \cdot \vec{\pi} | u_{n',\vec{0}} \rangle}{E_{n,\vec{0}} - E_{n',\vec{0}}} u_{n',\vec{0}}$$

$$\vec{\pi} = \vec{p} + \frac{\hbar}{4m_0c^2} (\vec{\sigma} \times \nabla V)$$

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\langle u_{n,\vec{0}} | \vec{k} \cdot \vec{\pi} | u_{m,\vec{0}} \rangle|^2}{E_{n,\vec{0}} - E_{m,\vec{0}}}$$

On peut conclure de ce rappel que l'état propre $u_{n,\vec{k}}$ caractérisant la bande n est à l'ordre zéro l'état $u_{n,\vec{0}}$ et à l'ordre 1 un état couplé à d'autres bandes. Ce couplage va être à l'origine de nombreux mécanismes introduits par la suite.

Pour calculer les composantes de ce couplage, plaçons nous tout d'abord dans le modèle de Kane qui consiste à ne considérer qu'une base restreinte ($u_{n,\vec{0}}$, $n = 1$ à 8) représentant les bandes de conduction Γ_6 pour $n = 1, 2$, de valence Γ_8 pour $n = 3, 4, 5, 6$ et de "split off" Γ_7 pour $n = 7, 8$ situées au voisinage du point Γ . La base est choisie de telle sorte que l'expression du couplage spin orbite et donc de l'opérateur $\vec{J} = \vec{L} + \vec{\sigma}$ dans cette base est diagonale. Son expression est donnée ci-dessous :

$$u_i \text{ expression } |J, m_J\rangle$$

$$\left. \begin{array}{l} u_1 \quad i|S \uparrow\rangle \quad \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ u_2 \quad i|S \downarrow\rangle \quad \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \end{array} \right\} = \Gamma_6$$

$$\left. \begin{array}{l} u_3 \quad -\sqrt{\frac{2}{3}}|Z \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{6}}|(X + iY) \downarrow\rangle \quad \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ u_4 \quad -\sqrt{\frac{2}{3}}|Z \downarrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{6}}|(X - iY) \uparrow\rangle \quad \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \\ u_5 \quad \frac{1}{\sqrt{2}}|(X + iY) \uparrow\rangle \quad \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \\ u_6 \quad \frac{1}{\sqrt{2}}|(X - iY) \downarrow\rangle \quad \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \end{array} \right\} = \Gamma_8$$

$$\left. \begin{array}{l} u_7 \quad \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|(X + iY) \downarrow\rangle \quad \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \\ u_8 \quad -\frac{1}{\sqrt{3}}|Z \downarrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{3}}|(X - iY) \uparrow\rangle \quad \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \end{array} \right\} = \Gamma_7$$

A noter que les bandes Γ_8 et Γ_7 sont séparées en énergie du fait du couplage spin orbite

d'une valeur $\Delta_0 = 0.38eV$ pour InAs. L'expression de $W(\vec{k})$ dans la base précédente est donnée page 43 de [2]. Elle permet d'en déduire les relations de dispersion des trois bandes pour ce niveau d'approximation et ainsi l'allure du diagramme de bande de *GaAs* au voisinage du gap. Cette dernière est représentée figure 1.2. Ce modèle permet aussi d'introduire la distinction entre la bande de valence dite de trous "lourds", représentée par les états u_5, u_6 , de masse effective dans ce modèle m_0 (masse de l'électron) et celle dite de trous légers, représentée par les états u_3, u_4 , de masse effective inférieure.

Ce modèle ne va cependant pas nous permettre d'expliquer l'origine de certains phénomènes qui vont apparaître dans la suite de l'exposé. C'est pourquoi nous devons nous placer à un niveau d'approximations moindre et considérer l'influence de la deuxième bande de conduction Γ_{4c} sur la dispersion des bandes Γ_8 et Γ_6 . Comme le montre G. Bastard ([2] page 50), prendre en compte l'action de ces bandes revient à prendre comme hamiltonien perturbatif non pas l'hamiltonien W précédent, mais :

$$\widetilde{W} = W + W \sum_{\nu} \frac{|\nu\rangle\langle\nu|}{\epsilon - \epsilon_{\nu}} W$$

Avec ν les indices des bandes supplémentaires considérées . Cette méthode permet ainsi notamment d'obtenir une relation de dispersion plus précise pour la bande Γ_8 . Le calcul de l'hamiltonien $4 * 4$ décrivant cette relation de dispersion dans la base réduite u_n , $n = 3, 4, 5, 6$ qui tient donc compte du couplage avec les deux premières bandes de conduction est explicité dans le détail dans la référence [1].

Luttinger [4] dans son papier de 1956 obtient grâce à la théorie des groupes une expression équivalente de cet hamiltonien. Il peut s'écrire sous la forme suivante dans la base Γ_8 ([5]) :

$$\mathbf{H}_L = \begin{pmatrix} P+Q & R & -S & 0 \\ R^* & P-Q & 0 & S \\ -S^* & 0 & P-Q & R \\ 0 & S^* & R^* & P+Q \end{pmatrix}$$

P , Q , R et S dépendent des composantes de \vec{k} et de paramètres dits de Luttinger dont la correspondance avec les paramètres de la théorie $\vec{k} \cdot \vec{p}$ peut se trouver dans [1]. L'expression de cet hamiltonien nous prouve que les fonctions propres des trous sont en général des mélanges de trous lourds et légers. Une conséquence importante de ce mélange est que les fonctions d'onde de trous comportent une composante de spin *up* et une de spin *down*. Ce mélange est, comme nous le verrons par la suite, à l'origine de la relaxation du spin du trou dans les hétérostructures. Nous verrons également que le confinement et les contraintes dans les boîtes modifient dramatiquement cette propriété.

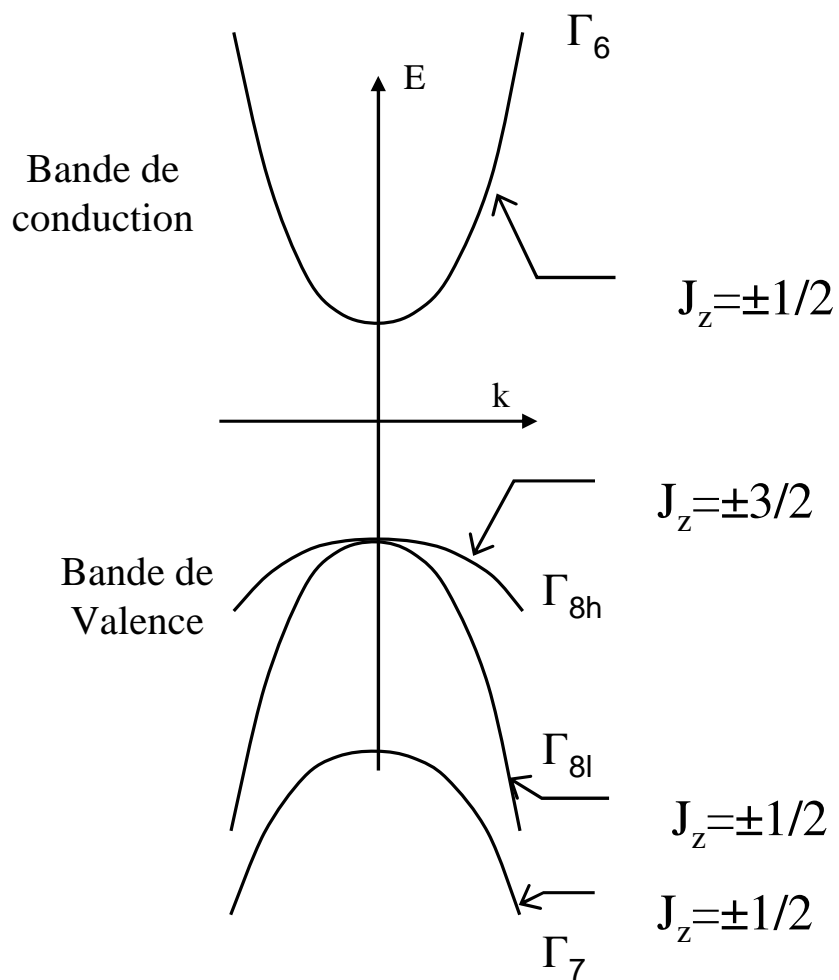


FIG. 1.2 – Diagramme de bandes des matériaux III-V au voisinage du gap

1.2.2 La couche de mouillage : un puits quantique sous forte contrainte biaxiale

Ce paragraphe justifie pourquoi une excitation optique dans la couche de mouillage ne crée que des trous lourds.

En première approximation, la couche de mouillage sera assimilée par la suite à un puits de potentiel suivant l'axe de croissance (z).

Le principe du calcul des niveaux d'énergie s'effectue en utilisant le formalisme des fonctions enveloppes. Du fait du confinement selon (z), l'invariance de la fonction d'onde par translation est conservée dans le plan du puits mais est supprimée selon (z). Si on suppose que la composante de la fonction d'onde en z peut être découplée de celle dans le plan du puits, la fonction d'onde s'écrit :

$$\Phi_{n, \vec{k}}(\vec{r}) = \sum_m \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}_\perp} \chi_m(z) u_{m, \vec{0}}(\vec{r})$$

\vec{k}_\perp et \vec{r}_\perp sont respectivement le vecteur d'onde et le vecteur position dans le plan du puits. L'étude menée précédemment pour *GaAs* peut se répéter en utilisant ces nouvelles fonctions d'onde. G. Bastard [2] montre que le calcul des fonctions d'onde $\chi_m(z)$ s'effectue exactement de la même façon que celui des coefficients $c_m(\vec{k})$. Il suffit de remplacer dans l'expression de l'hamiltonien précédent k_z par $-i\partial/\partial z$. Des conditions de continuité de la fonction d'onde aux interfaces du puits sont à prendre par ailleurs en considération. Tout est affaire dès lors du niveau d'approximation choisi pour le calcul. Rappelons quelques résultats importants :

- ◆ Le confinement selon z conduit à la formation de sous-bandes (représentées par l'index p) des niveaux d'énergie. Si on considère le modèle de Ben Daniel-Duke (approximation diagonale et dispersion parabolique), les énergies de la bande Γ_6 s'écrivent :

$$\epsilon_p^{\Gamma_6} = \epsilon_c + E_p + \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2m_c}$$

avec m_c la masse effective moyenne de la bande de conduction, ϵ_c l'énergie du

bas de la bande de conduction et E_p celle du bas de chaque sous-bande. Les fonctions d'onde $\chi_p^{\Gamma_6}(z)$ associées sont alternativement paires et impaires (en prenant $z = 0$ au centre d'un puits symétrique).

- ◆ L'énergie de confinement dépendant de la masse effective, elle diffère pour les trous lourds et légers. On a donc une levée de dégénérescence à $\vec{k} = \vec{0}$ des sous-bandes de valence dans un puits. La séquence de ces sous-bandes est habituellement HH_1, LH_1, HH_2 etc. La sous-bande la plus haute en énergie est donc une bande de trous lourds.

Cette levée de dégénérescence demeure quand on calcule les niveaux d'énergie de la bande Γ_8 en utilisant l'hamiltonien de Luttinger. Par ailleurs, dès que $k_{\perp} \neq 0$, comme pour le matériau massif, les fonctions propres des trous sont couplées. Chaque fonction d'onde de trous sera un mélange de particules lourde et légère. Le calcul utilisant la méthode de perturbations nous apprend cependant que le coefficient associé à la partie trou léger dans la fonction d'onde du trou lourd est inversement proportionnel à la différence d'énergie entre trous lourds et légers. La partie trou léger sera donc d'autant plus négligeable que l'écart sera grand (et k_{\perp} petit).

Dans la couche de mouillage, la contrainte s'ajoute au confinement pour amplifier la levée de dégénérescence de Γ_8 en $\vec{k} = \vec{0}$. InAs ayant un paramètre de maille supérieur à celui de $GaAs$, on peut modéliser simplement les contraintes qui en résultent en considérant que la maille élémentaire de InAs est comprimée identiquement dans les deux directions du plan et s'allonge selon l'axe de croissance. (contrainte biaxiale selon [001]). Le tenseur des contraintes admet alors comme éléments non nuls $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ et ϵ_{zz} . A l'hamiltonien de Luttinger précédent s'ajoute l'hamiltonien suivant dû aux contraintes, exprimé dans la même base (u_5, u_4, u_3, u_6) .

$$\mathbf{H}_{\text{contraintes}} = \begin{pmatrix} a\epsilon + \frac{1}{2}b(\epsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a\epsilon - \frac{1}{2}b(\epsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & a\epsilon - \frac{1}{2}b(\epsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & a\epsilon + \frac{1}{2}b(\epsilon - 3\epsilon_{zz}) \end{pmatrix}$$

On néglige ici l'interaction spin orbite. ϵ est la trace du tenseur des déformations, a et b sont les potentiels de déformation de la bande de valence. On voit tout de suite que les termes diagonaux de cet hamiltonien diffèrent pour les trous lourds et légers, introduisant une levée de dégénérescence supplémentaire.

1.2.3 Structure électronique des boîtes

1.2.3.1 Niveaux d'énergie

Je rappelle ici brièvement la structure électronique d'une boîte quantique puis celle de l'exciton. Les différentes méthodes de calcul utilisant un formalisme $\vec{k} \cdot \vec{p}$ peuvent être trouvées dans la thèse d'Angela Vasanelli ([6]).

Du fait du confinement en énergie dans les trois directions de l'espace, les niveaux d'énergie des électrons et des trous sont désormais entièrement discrétisés ; la fonction d'onde de l'électron, dans un modèle à une bande, s'écrit alors sous la forme :

$$\Phi_n(\vec{r}) = \Psi_n(\vec{r})u_n(\vec{r})$$

Avec $\Psi_n(\vec{r})$ la fonction enveloppe et $u_n(\vec{r})$ la partie de Bloch.

De plus, la forte contrainte biaxiale exercée entre In(Ga)As et GaAs, ajoutée à la rupture de symétrie entre l'axe de croissance et les directions du plan (le confinement est plus fort selon z), repousse, comme dans le cas de la couche de mouillage, la bande de trous légers. Les trous lourds seront donc seuls considérés par la suite.

On considère généralement en première approximation la boîte comme une pyramide à base circulaire qui a donc une symétrie de révolution par rapport à l'axe de croissance (z). L'hamiltonien à une particule (électron ou trou) commute dès lors avec l'opérateur moment orbital L_z et les fonctions d'onde $\Psi_n(\vec{r})$ solution peuvent être représentées comme en physique atomique par un nombre quantique l , $\Psi_{n,l}(\vec{r})$. Les états associés

seront dénommés de même par la nomenclature utilisée en physique atomique :

$$l = 0 \leftrightarrow \text{états } S$$

$$l = 1 \leftrightarrow \text{états } P$$

$$\dots \leftrightarrow \dots$$

A noter que du fait du très fort confinement suivant z , l'état de symétrie P_z ($l = 0$) n'est pas confiné.

Dans la pratique, les boîtes n'ont pas une symétrie de révolution parfaite. Cette brisure de symétrie lève la dégénérescence des deux états P restants ($l = \pm 1$). Cet aspect peut se trouver dans les thèses de S. Hameau ([7]) et de J. N. Isaia ([8]). On notera par P_X et P_Y les deux états. Des mesures d'absorption intrabande, réalisées également par S. Hameau puis par J. N. Isaia ont permis de mesurer une valeur de la levée de dégénérescence de ces deux niveaux d'environ $5meV$ pour un ensemble de boîtes quantiques d'InAs.

Le confinement en énergie des porteurs varie selon les dimensions des boîtes. Plus la boîte est petite, plus le confinement est fort et donc plus les niveaux d'énergie sont éloignés du fond du puits (comme pour un puits à une dimension). Les boîtes étudiées auront un gap (ou transition fondamentale) compris entre $1.15eV$ et $1.3eV$. Rappelons que la couche de mouillage a un niveau fondamental situé vers $1.42eV$ et GaAs vers $1.51eV$ à environ $4K$.

Le niveau fondamental des boîtes est donc constitué de deux états S de conduction (moment angulaire total selon z : $J_z^{BC} = \pm 1/2$) et de deux états S de valence ($J_z^{BV} = \pm 3/2$) dégénérés. On parlera désormais en terme d'électron et de trou : le moment angulaire total de l'électron est noté s_z et vaut sur le niveau fondamental de la boîte $\pm 1/2$; le trou a quant à lui un moment opposé à l'état électronique de valence qui lui est associé. On notera j_z son moment; $j_z = \pm 3/2$ pour $J_z^{BV} = \mp 3/2$. Le niveau fondamental de cette particule formée d'un électron et d'un trou, qu'on appellera

par abus de langage exciton, est donc quatre fois dégénéré. Ses états peuvent être représentés par la valeur du moment angulaire selon (z) (On notera par la suite $J_z^{exciton} = J_z$) :

$$J_z^{exciton} = j_z + s_z$$

$$J_z = 3/2 + 1/2 = 2, J_z = -2, J_z = -1 \text{ ou } J_z = 1$$

On qualifera d'exciton brillant, l'exciton de moment angulaire selon z $J_z = \pm 1$ et d'exciton noir celui de moment angulaire selon z $J_z = \pm 2$.

1.2.3.2 Interaction de Coulomb-Structure fine de l'exciton

Le confinement des électrons et des trous dans la boîte nous oblige à prendre en compte les interactions qui vont apparaître du fait du recouvrement des fonctions d'onde des deux porteurs : le terme de Coulomb direct d'une part (J) et le terme d'échange d'autre part (K). Les expressions générales de ces deux termes pour deux particules de fonctions d'onde $\Phi(\vec{r}_1, \sigma_1)$, $\Psi(\vec{r}_2, \sigma_2)$ s'écrivent :

$$J = \frac{e^2}{\epsilon} \int \int \frac{|\Phi(\vec{r}_1)|^2 |\Psi(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2$$

$$K = \frac{e^2}{\epsilon} \int \int \frac{\Phi^*(\vec{r}_1) \Psi^*(\vec{r}_2) \Phi(\vec{r}_2) \Psi(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2$$

Le terme attractif de Coulomb entre l'électron et le trou a pour conséquence d'abaisser en énergie les niveaux confinés (d'environ $20meV$ pour la transition $S_e - S_h$ d'après A. Vasanelli [6]).

Le calcul de l'interaction d'échange est pour sa part beaucoup plus complexe. Il se décompose en une partie dite courte portée et une dite longue portée (Voir [9]). La partie courte portée peut se réexprimer sous la forme suivante donnée par la théorie des groupes.

$$H = - \sum_{i=x,y,z} (a_i \hat{j}_i \sigma_i + b_i \hat{j}_i^3 \sigma_i)$$

Avec \hat{j}_i les matrices $4 * 4$ initialement introduites par Luttinger [4] représentant le moment angulaire total des trous et σ_i les matrices de Pauli pour l'électron.

Cette forme a l'avantage de mettre en évidence les principales levées de dégénérescence de la structure fine de l'exciton, dues à l'interaction d'échange. Elle ne permet pas en revanche de calculer précisément les valeurs des splittings obtenus. Il faut prendre également en compte pour ce calcul le terme longue portée.

En raison de la forte séparation énergétique des états de trous lourds et légers, on ne considèrera par la suite que les trous lourds, ce qui revient à ne considérer dans les matrices $4 * 4$ précédentes que les blocs \tilde{j}_i $2 * 2$ représentant les trous lourds. Ceux-ci vérifient :

$$\tilde{\mathbf{j}}_x = \tilde{\mathbf{j}}_y = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$\tilde{\mathbf{j}}_x^3 = \begin{pmatrix} 0 & 3/4 \\ +3/4 & 0 \end{pmatrix}$$

$$\tilde{\mathbf{j}}_y^3 = \begin{pmatrix} 0 & -3/4i \\ 3/4i & 0 \end{pmatrix}$$

$$\tilde{\mathbf{j}}_z = \begin{pmatrix} -3/2 & 0 \\ 0 & 3/2 \end{pmatrix}$$

En appliquant l'hamiltonien ainsi formé à la base des quatre excitons possibles :

$$\begin{aligned}
|+1\rangle &= |j_z = +3/2, s_z = -1/2\rangle \\
|-1\rangle &= |-3/2, +1/2\rangle \\
|+2\rangle &= |3/2, +1/2\rangle \\
|-2\rangle &= |-3/2, -1/2\rangle
\end{aligned}$$

on obtient l'hamiltonien suivant :

$$\mathbf{H} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 & \delta_2 & 0 & 0 \\ \delta_2 & \delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & \delta_1 \\ 0 & 0 & \delta_1 & -\delta_0 \end{pmatrix}$$

Avec $\delta_0 = 1.5(a_z + 2.25b_z)$, $\delta_2 = -0.75(b_x - b_y)$ et $\delta_1 = -0.75(b_x + b_y)$.

On en conclut deux choses :

Si la symétrie de la boîte appartient au groupe D_{2d} , $b_x = b_y$ et les excitons brillants ($|\pm 1\rangle$) restent dégénérés tandis que les excitons noirs subissent une levée de dégénérescence (voir graphe 1.3). En revanche, si la symétrie de la boîte est inférieure, $b_x \neq b_y$ et on observe également une levée de dégénérescence de l'exciton brillant dont les états propres deviennent polarisés linéairement. Ce dernier splitting peut s'observer en spectroscopie sur boîte unique. Un exemple est donné au chapitre 3, page 109.

La valeur de δ_0 obtenue pour différentes boîtes d'InAs par M. Bayer ([10]) est de l'ordre de $400\mu eV$ tandis que celle de δ_2 obtenue lors de nos expériences sur boîtes uniques ne dépassait pas $80\mu eV$. Le terme δ_1 , quant à lui, est beaucoup plus petit et ne peut pas être systématiquement mesuré.

On peut réécrire cet hamiltonien en utilisant la notion de pseudospin pour le trou lourd. Les deux états ($j_z = \pm 3/2$) du trou lourd sont alors représentés par un pseudospin $j_z^{ps} = \mp 1/2$, de telle sorte que pour $j_z = +3/2$, $j_z^{ps} = -1/2$.

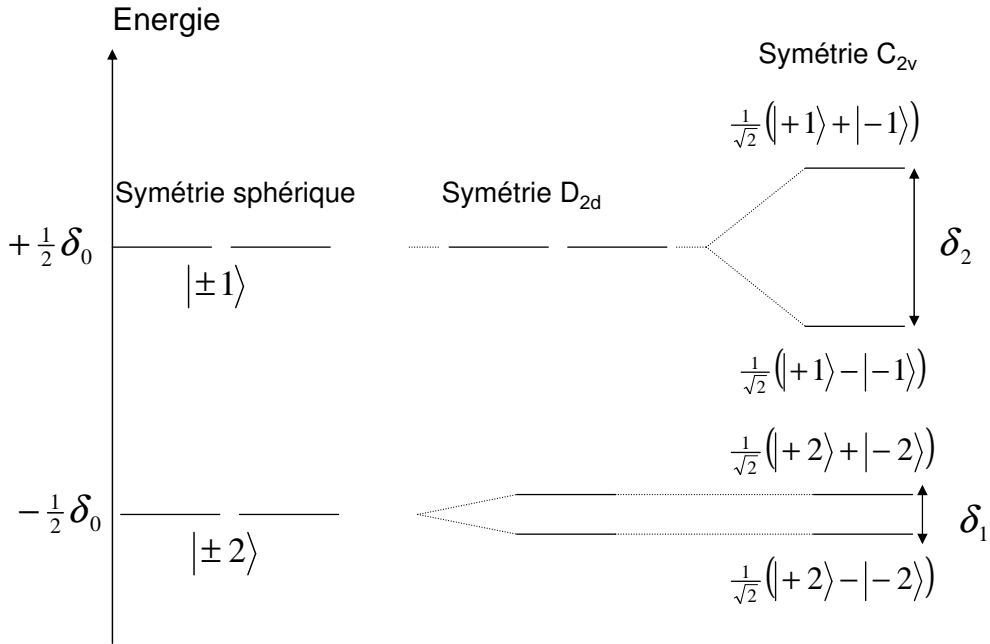


FIG. 1.3 – Structure fine de l'exciton suivant la symétrie

L'opérateur associé, noté \widehat{j}^{ps} a comme composante les matrices de Pauli et l'hamiltonien se réécrit plus simplement :

$$H_{e,h}^{ex} = 2\delta_0 \widehat{j}_z^{ps} \sigma_z + \delta_2 (\widehat{j}_x^{ps} \sigma_x - \widehat{j}_y^{ps} \sigma_y) + \delta_1 (\widehat{j}_x^{ps} \sigma_x + \widehat{j}_y^{ps} \sigma_y)$$

Cette levée de dégénérescence des états de l'exciton brillant va avoir une grande influence sur sa polarisation. Nous verrons pourquoi à la fin du chapitre.

1.3 Relaxation de spin des électrons

1.3.1 Mécanismes agissant dans les structures 3D ou 2D

Ils sont nombreux et agissent plus ou moins efficacement selon la nature de la structure, son degré d'impuretés et la température. Voici les principaux qui agissent dans les semi-conducteurs III-V.

1.3.1.1 Mécanisme de D'yakonov Perel

Ce mécanisme prend sa source dans l'interaction $\vec{k} \cdot \vec{p}$ des bandes de conduction Γ_{7c} et Γ_{8c} avec les bandes Γ_6, Γ_8 et Γ_7 .

En considérant l'influence de ces bandes Γ_{7c} et Γ_{8c} sur la bande de conduction (Voir [11]), l'énergie de la première bande de conduction contient un terme supplémentaire en k^3 dit de spin-splitting (ou abusivement Dresselhaus) (cf [12] page 80) :

$$H_c = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \Gamma(\vec{\kappa} \cdot \vec{\sigma})$$

$$\kappa_Z = k_Z(k_x^2 - k_y^2)$$

Les autres composantes de $\vec{\kappa}$ sont obtenues par permutation circulaire. Γ dépend en outre du terme de spin orbit Δ_0 de la bande de valence et inclut les contributions des bandes de conduction Γ_{7c} et Γ_{8c} . A noter que ce terme est non nul du fait de l'absence de centre d'inversion.

Tout se passe donc comme si un champ magnétique dépendant du moment \vec{k} agissait sur le spin de l'électron, provoquant sa précession à la fréquence Ω autour de la direction du champ. Cette dernière dépendant de \vec{k} , toute collision va changer la direction du champ et provoquer ainsi la relaxation.

On peut dès lors estimer le temps de relaxation. Si on appelle τ_c le temps caractéristique d'évolution de \vec{k} , deux cas, illustrés figure 1.4, sont à considérer :

1. Si $\Omega\tau_c > 1$, le spin précesse de nombreuses fois autour du champ entre deux collisions. La direction moyenne du spin est donc parallèle au champ. Son temps de relaxation sera donc $\tau = \tau_c$.
2. Si $\Omega\tau_c \ll 1$, l'angle $\Omega\tau_c$ dont a tourné le spin entre deux collisions est faible. Sa valeur quadratique moyenne parcourue en un temps $t \gg \tau_c$ peut s'écrire $\overline{(\Omega\tau_c)^2}t/\tau_c$, avec $\overline{\Omega^2}$ la valeur moyenne de Ω^2 sur toutes les directions possibles de \vec{k} . En prenant cette valeur quadratique moyenne égale à 1, on obtient une estimation du temps de relaxation τ : $\tau \sim 1/\overline{\Omega^2}\tau_c$

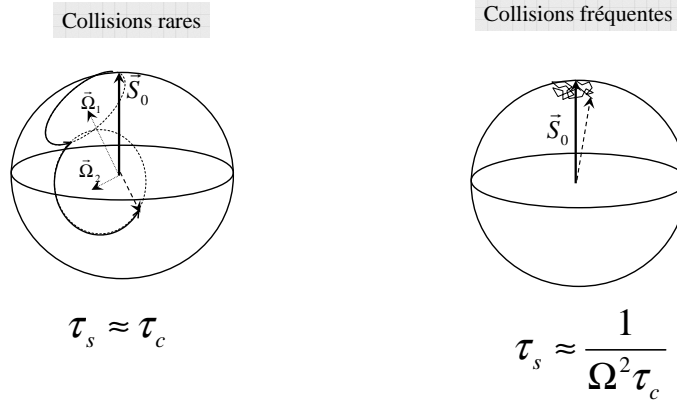


FIG. 1.4 – Evolution du spin électronique selon la valeur du temps de relaxation du moment

On trouvera une description détaillée de ce mécanisme ainsi que des suivants dans le livre référence [12].

Ce mécanisme est prépondérant dans les hétérostructures à haute température.

1.3.1.2 Mécanisme d' Elliott-Yafet

Si on reprend l'hamiltonien issu du modèle de Kane, on s'aperçoit que le couplage spin orbite à \vec{k} fini mélange les états des bandes Γ_7 , Γ_8 et Γ_6 . L'état électronique sur la bande de conduction n'est dès lors plus un état pur de spin mais un état mélangé de spin *up* et *down* (comme pour le trou). Tout processus diffusif, en couplant ces états mélangés, va donc provoquer la relaxation.

1.3.1.3 Mécanisme de Bir Aronov Pikus

Ce mécanisme a pour origine l'interaction d'échange électron trou. Le spin flip d'un trou par exemple peut entraîner celui de l'électron du fait de cette interaction. Le principal processus qui peut retourner le spin d'un trou prend sa source à nouveau dans l'interaction spin orbite qui mélange les états de trous lourds $|J, J_Z \rangle = |3/2, \pm 3/2 \rangle$ et légers $|J, J_Z \rangle = |3/2, \pm 1/2 \rangle$. Les processus diffusifs peuvent dès lors renverser le

spin du trou et donc celui de l'électron par l'intermédiaire de l'interaction d'échange.

1.3.1.4 Bilan

Ces trois mécanismes reposent finalement sur l'action combinée d'une interaction (échange ou couplage spin orbite) dépendante du spin et de processus diffusifs. Dans les boîtes quantiques, le confinement supprime ces processus et on s'attend donc à obtenir des temps de relaxation beaucoup plus longs pour les boîtes.

Par ailleurs, il faut noter que des études menées dans les puits quantiques GaAs(001) montrent qu'un électron photoinjecté dans ce puits et initialement polarisé en spin va perdre son orientation de spin en quelques dizaines voir centaines de ps ([13]). Des études expérimentales menées par X. Marie (voir [14]) montrent en revanche que le trou perd son spin beaucoup plus vite (du fait du fort mélange entre trous lourds et trous légers qui introduit une relaxation selon un mécanisme similaire à celui d'Elliot-Yafet) et ceci malgré la levée de dégénérescence des bandes de trous lourds et légers due au confinement du puits et à la contrainte. Ces observations nous inciteront par la suite à considérer que lorsqu'on crée dans la couche de mouillage des électrons et des trous polarisés en spin, les électrons conserveront leur orientation de spin pendant les quelques picosecondes que dure la thermalisation tandis que les trous la perdront.

1.3.2 Action du terme de Dresselhaus dans les boîtes

Khaetskii a étudié la possibilité de renversement du spin lors d'une transition de l'électron entre un niveau excité et le niveau fondamental [15] et également entre deux sous niveaux Zeeman [16]. Le couplage provoquant le mélange des fonctions d'onde électroniques de spins opposés est le même terme de Dresselhaus introduit précédemment, section 1.3.1.1. Khaetskii obtient ainsi dans le cas d'une transition médiée par les phonons avec renversement du spin entre le premier état excité et le niveau fondamental un temps caractéristique de $100\mu s$ pour le plus court (Le temps dépend fortement de la valeur attribuée au terme de Dresselhaus). Dans le cas de deux

sous niveaux Zeeman, le temps obtenu peut atteindre la milliseconde pour des champs magnétiques de l'ordre du tesla. Il faut noter que de tels temps ont été effectivement observés récemment (premier semestre 2004) par J. J. Finley au WSI de Munich lors d'expériences réalisées sous champ magnétique.

1.3.3 Interaction hyperfine

En confinant les électrons, les boîtes quantiques suppriment les mécanismes habituels de relaxation, mais rendent les porteurs sensibles aux fluctuations locales du champ nucléaire. Le couplage hyperfin a donc été présumé pour expliquer la relaxation du spin des électrons dans les boîtes. Les noyaux porteurs d'un moment magnétique dans la boîte peuvent en effet créer un champ magnétique nucléaire qui va agir sur le spin de l'électron ; inversement, chaque spin des noyaux nucléaires va être affecté à son tour par le champ magnétique créé par les spins électroniques. La modélisation de ces effets croisés a été réalisée en 2002 par Merkulov ([17]) dans le cas des boîtes. (Une description complète du couplage entre électrons et noyaux se trouvent sinon dans [12]).

Merkulov distingue pour sa modélisation trois temps caractéristiques :

- ◆ la période de precession du spin de l'électron autour d'un champ nucléaire quasi stationnaire
- ◆ la période de precession du spin nucléaire dans le champ électronique
- ◆ le temps de relaxation du spin nucléaire dans le champ magnétique de ses voisins.

Commençons par estimer ce dernier temps.

1.3.3.1 Système de spins nucléaires

On ne considère donc pour le moment que le système nucléaire de spin : celui ci est caractérisé par des interactions dipôle-dipôle entre les moments magnétiques. Chaque noyau subit un champ nucléaire de l'ordre de $B_L = \frac{\mu_0 \mu_I}{a^3}$ de la part de ces voisins,

avec μ_I le moment magnétique nucléaire et a le paramètre de maille. Ce champ est de quelques gauss. La période de précession du spin nucléaire dans ce champ vaut $\frac{\hbar a^3}{\mu_I^2 \mu_0}$, soit environ $10^{-4} s$. Ce temps représente donc le temps caractéristique d'évolution du spin nucléaire dans le champ magnétique de ses voisins.

1.3.3.2 Précession de spin dans le champ nucléaire

Pour un semiconducteur III-V, l'interaction hyperfine ressentie par un électron localisé de la première bande de conduction est décrite par l'hamiltonien suivant :

$$H_{hf} = \frac{v_0}{2} \sum_j A_j |\psi(\vec{R}_j)|^2 (\vec{I}_j \cdot \vec{\sigma})$$

La somme a lieu sur tous les noyaux j , avec v_0 le volume de la cellule élémentaire, $\psi(\vec{R}_j)$ l'enveloppe de la fonction d'onde de l'électron sur le noyau j de position \vec{R}_j , $\vec{\sigma}$ les matrices de Pauli, \vec{I}_j le spin du noyau j et :

$$A_j = \frac{16\pi\mu_B\mu_j}{3I_j} |u_c(\vec{R}_j)|^2$$

avec $u_c(\vec{R}_j)$ la fonction de Bloch de l'électron sur le noyau j .

Afin d'obtenir une expression du champ magnétique nucléaire \vec{B}_N ressenti par un électron, supposons que les noyaux ont un spin identique moyen \vec{I}_{moy} . L'interaction hyperfine se réécrit sous la forme :

$$H_{hf} = \frac{1}{2} \mu_B g_e \vec{\sigma} \cdot \vec{B}_N$$

$$\vec{B}_N = \frac{16\pi\mu_I \zeta^2 N}{3g_e} \frac{\vec{I}_{moy}}{I}$$

avec ζ un paramètre dépendant de la valeur de la fonction d'onde des électrons au niveau des noyaux, N la concentration de noyaux et g_e le rapport gyromagnétique de l'électron.

Remarque : Une remarque importante est à faire à ce niveau là : puisque le champ nucléaire effectif dépend de la valeur de la fonction d'onde du porteur (\rightarrow ici l'électron \leftarrow)

au niveau du noyau, ce champ est nul pour les trous puisque leur fonction de Bloch s'annule à la position du noyau en raison de leur symétrie de type P (Voir la thèse de S. Cortez [18]). L'interaction hyperfine n'agit donc que sur les électrons.

Si les électrons ont un spin moyen $\vec{S} \neq \vec{0}$, les noyaux nucléaires sont, de même, affectés par un champ électronique moyen \vec{B}_e :

$$\vec{B}_e = -\frac{16\pi\mu_B n_e \zeta^2}{3} \vec{S}$$

avec n_e la concentration électronique.

En règle générale dans les semiconducteurs, $N/n_e \gg \mu_B/\mu_I$ et ainsi :

$$B_N \gg B_e \quad (1.1)$$

La fréquence de precession de l'électron dans le champ nucléaire est donc beaucoup plus grande que celle d'un noyau dans le champ électronique. On peut donc dans un premier temps négliger les fluctuations du champ nucléaire induites par le champ électronique.

Merkulov considère donc pour commencer l'évolution de spins électroniques dans un champ magnétique nucléaire quasi-statique :

1.3.3.3 Déphasage du spin électronique dans un champ magnétique quasi-statique

Considérons le cas d'un ensemble de boîtes quantiques identiques dans lesquelles sont photocréés simultanément à $t = 0$ des électrons ayant tous la même orientation de spin. Les spins nucléaires étant désorientés les uns vis à vis des autres, le champ nucléaire diffère d'une boîte à l'autre ; sa direction et sa norme sont distribuées de façon aléatoire dans les boîtes et le champ va donc avoir un effet différent sur le spin électronique initial dans chaque boîte. Dès lors, même si chaque électron précesse de façon cohérente dans le champ nucléaire gelé de sa boîte, la polarisation moyenne de l'ensemble des spins électroniques va diminuer.

Merkulov montre ainsi que la polarisation moyenne d'un ensemble de spins situés dans un ensemble de boîtes décroît avec un temps caractéristique T_Δ selon la formule :

$$\langle \overrightarrow{S}(t) \rangle = \frac{\overrightarrow{S}_0}{3} \left\{ 1 + 2 \left[1 - 2 \left(\frac{t}{T_\Delta} \right)^2 \right] \exp \left[- \left(\frac{t}{T_\Delta} \right)^2 \right] \right\}$$

avec \overrightarrow{S}_0 la polarisation initiale photocréée. T_Δ dépend entre autre de la dispersion de la distribution du champ nucléaire et vaudrait pour des boîtes entre 100ps et 1ns. Ce temps serait donc relativement court.

Si ce mécanisme est dominant, il faut noter deux choses :

1. C'est ce temps de relaxation qui va être mesuré dès qu'on travaille sur ensemble de boîtes. Ce sera également ce temps qu'on mesurera sur boîtes uniques puisque l'acquisition de la polarisation s'effectue en continu ou en répétant une mesure pulsée un grand nombre de fois (Sur des échelles de temps de l'ordre de la seconde, soit donc bien plus grand que le temps de variation du champ nucléaire)
2. La polarisation finale observée du fait de ce mécanisme n'est pas nulle : on conserve au bout de ce temps caractéristique T_Δ un tiers de la polarisation initiale. Ceci se conçoit assez bien puisque dans un tiers des cas, le champ nucléaire est essentiellement parallèle à \overrightarrow{S}_0 et ne produit donc pas de précession.

Il ne faut pas confondre ce temps de relaxation de la polarisation moyenne d'un ensemble de spins avec le temps de relaxation d'un seul spin. Chaque spin précesse en effet autour du champ nucléaire de la boîte de façon cohérente pendant cette phase. La décohérence n'apparaît que lorsque le champ nucléaire de chaque boîte évolue du fait du couplage hyperfin. Cette évolution du champ, présentée dans le paragraphe suivant, va naturellement être responsable de la relaxation des 33% de polarisation restante.

1.3.3.4 Déphasage du spin électronique dû aux variations du champ nucléaire

Nous savons que l'électron précesse autour du champ nucléaire en un temps caractéristique beaucoup plus court que le temps d'évolution du champ. Les noyaux d'une

boîte voient donc comme orientation moyenne du spin de l'électron celle du champ nucléaire. Le champ électronique vu par les noyaux est donc parallèle à \vec{B}_N . Cependant, si on reprend l'expression donnée pour le champ électronique, on s'aperçoit que ce dernier dépend de la valeur de la fonction d'onde de l'électron au niveau du noyau. Celle-ci va varier d'un noyau à l'autre, entraînant une période de précession différente pour chaque noyau. C'est cette différence de temps de précession qui va entraîner une variation lente du champ magnétique nucléaire et ainsi la relaxation des 33% de polarisation électronique initiale restant. Merkulov modélise et estime ce second temps pour trouver environ $300ns$ pour des boîtes de GaAs.

1.3.4 Action d'un champ magnétique

Les temps obtenus précédemment sont profondément modifiés si un champ magnétique est appliqué à la structure. Lorsque ce champ extérieur devient nettement supérieur au champ nucléaire B_N , les électrons s'orientent dans le sens du champ. Si la polarisation initialement créée est parallèle au champ extérieur, la valeur finale de cette polarisation augmente de 33% à quasiment 100% de la valeur initiale quand le champ augmente. Le premier mécanisme de relaxation est donc supprimé.

1.4 Orientation optique

Cette section présente comment la polarisation circulaire de la lumière peut nous permettre non seulement d'injecter dans les semi-conducteurs des porteurs de spin dans un état bien défini mais également de connaître l'évolution de ces spins après avoir été injectés.

1.4.1 Règles de sélection optique

L'hamiltonien ([1] ou [2]) à un électron en présence d'un champ électromagnétique de potentiel vecteur \vec{A} s'écrit :

$$H = H_0 + \frac{e}{m_0 c} \vec{A} \cdot \vec{p}$$

Avec H_0 l'hamiltonien en absence de champ. On considère que le second terme de cette expression est suffisamment faible pour pouvoir utiliser la règle d'or de Fermi ; cette dernière donne la probabilité de transition d'un état de la bande de valence $|v\rangle$ vers la bande de conduction $|c\rangle$, probabilité P proportionnelle à :

$$P \propto | \langle c | \vec{A} \cdot \vec{p} | v \rangle |^2$$

En introduisant les fonctions introduites dans la seconde partie de ce chapitre, page 18, et en se plaçant dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, on obtient que cette probabilité est proportionnelle à :

$$(\langle u_c | \vec{e} \cdot \vec{p} | u_v \rangle)^2 = \left(\int_{cellule} u_c^*(\vec{r}) (\vec{e} \cdot \vec{p}) u_v(\vec{r}) d\vec{r} \right)^2$$

Avec \vec{e} le vecteur unitaire indiquant la polarisation du champ électrique. On montre par ailleurs que :

$$\begin{aligned} \vec{k}_c &\approx \vec{k}_v \\ E_c(\vec{k}_c) &= E_v(\vec{k}_v) + \hbar\omega \end{aligned}$$

La première égalité traduit la conservation de la quantité de mouvement de la transition (La quantité de mouvement des photons est négligeable devant celle des électrons) et la seconde la conservation de l'énergie.

En utilisant la base obtenue section 1.2.1, et en se rappelant que, par symétrie, seuls les termes du type : $\langle S \uparrow | p_x | X \uparrow \rangle = \langle S \uparrow | p_y | Y \uparrow \rangle = \langle S \uparrow | p_z | Z \uparrow \rangle$ sont non nuls, on obtient les règles de sélection optique du GaAs massif. Elles sont résumées sur le graphe 1.5 pour une onde plane se propageant selon l'axe (z).

Ces règles de sélection montrent qu'une excitation polarisée circulairement $\sigma+$ depuis un état de valence de moment cinétique suivant z , $+3/2$ crée dans la bande de conduction un électron de spin dans un état bien défini $-1/2$. Cependant pour une énergie d'excitation vérifiant $\hbar\omega < E_g + \Delta$, les bandes de trous lourds et de trous légers absorbent toutes les deux avec, ceci dit, des coefficients d'absorption différents, donnés sur le graphe 1.5. On voit sur ce graphe qu'une telle excitation crée 3 électrons de spin $-1/2$ pour 1 électron de spin $+1/2$. La polarisation initiale injectée, définie par la différence normalisée des nombres de spins injectés *up* et *down*, vaut dans ce cas :

$$P_0 = \frac{n_{\downarrow} - n_{\uparrow}}{n_{\downarrow} + n_{\uparrow}} = \frac{3 - 1}{3 + 1} = 50\%$$

Si en revanche, on excite également Γ_7 , ($\hbar\omega \geq E_g + \Delta$) cette polarisation initiale chute à zéro. L'orientation optique n'est finalement rendue possible que grâce au couplage spin orbite qui en séparant la bande Γ_7 de la bande Γ_8 nous permet d'injecter une polarisation initiale non nulle.

On utilisera par la suite le langage des trous et des électrons. La fonction d'onde du trou associée à la fonction d'onde de l'électron précédente $|u_v\rangle$ se déduit par l'opération d'inversion par rapport au temps : \hat{K} voir [19]. Ainsi par exemple, les états de Bloch des trous lourds s'écrivent :

$$\begin{aligned}\hat{K}|u_5\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}}|(X - iY) \downarrow\rangle \\ \hat{K}|u_6\rangle &= \frac{-i}{\sqrt{2}}|(X + iY) \uparrow\rangle\end{aligned}$$

L'état électronique $|u_5\rangle$ de moment angulaire selon (z) $+3/2$ peut être substitué par un état de trou de spin *down* et dont le moment angulaire selon (z) est $-3/2$. De même pour $|u_6\rangle$, le trou a un spin *up* et a un moment angulaire selon (z) de $+3/2$. Par la suite, on fera un abus de langage et on utilisera le terme de "spin" pour décrire le moment angulaire des trous lourds, la projection de celui ci ayant de toute

façon toujours le même signe que le spin associé. Cet abus de langage se justifie si on reprend les règles de sélection précédentes. On voit qu'une excitation circulaire polarisée $\sigma+$ dans la bande de trous lourds donne un électron de spin $-1/2$ et un trou de "spin" $+3/2$, de telle sorte que la somme égale 1, soit la valeur du spin du photon. Cette égalité traduit la conservation du moment angulaire lors de l'absorption. On pourra dire de même qu'un photon polarisé $\sigma-$ donne un électron de spin $+1/2$ et un trou lourd de spin $-3/2$ car $-1 = -3/2 + 1/2$. Cette règle est résumée dans le tableau suivant.

| <i>polarisation circulaire</i> | <i>spin trou lourd</i> | <i>spin électronique</i> |
|--------------------------------|------------------------|--------------------------|
| $\sigma+$ | $\frac{3}{2}$ | $-\frac{1}{2}$ |
| $\sigma-$ | $-\frac{3}{2}$ | $\frac{1}{2}$ |

La recombinaison radiative suivant les mêmes règles que l'absorption, on pourra déduire de l'étude de la polarisation de luminescence l'état des spins des électrons et des trous recombinés.

On s'intéressera donc expérimentalement par la suite au taux de polarisation circulaire de luminescence des structures semi-conductrices étudiées ; ce dernier est défini, pour une excitation polarisée circulairement $\sigma+$ par :

$$P = \frac{I_{\sigma+} - I_{\sigma-}}{I_{\sigma+} + I_{\sigma-}}$$

avec $I_{\sigma+}$ l'intensité polarisée circulairement $\sigma+$.

Les expériences d'optique qui seront présentées dans la suite de ce manuscrit seront donc essentiellement des expériences de photoluminescence résolues en polarisation

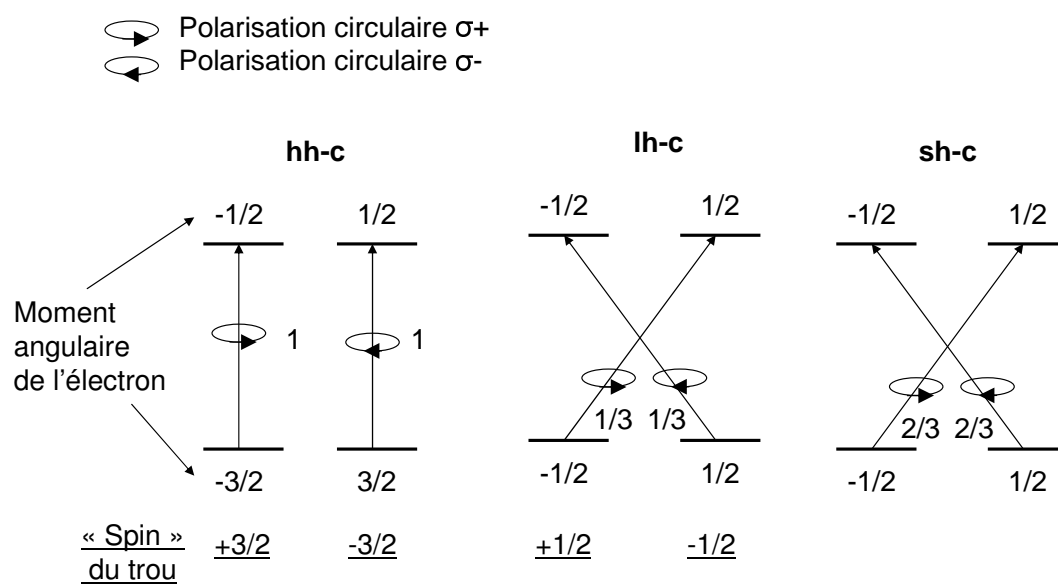


FIG. 1.5 – Règles de sélection pour une propagation selon l'axe (z) pour les transitions impliquant les bandes Γ_8 , Γ_7 et Γ_6 de GaAs massif. Les chiffres présents à côté des flèches représentent l'intensité relative des transitions.

1.4.2 Application à la couche de mouillage

Les règles de sélection optique précédentes s'appliquent dans le cas des structures 2D. La règle de conservation de la quantité de mouvement se traduit cependant différemment. On obtient en utilisant l'expression des fonctions d'onde donnée page 23 la probabilité de transition interbande suivante :

$$P \propto | \langle \chi_v | \chi_c \rangle \langle u_c | \vec{e} \cdot \vec{p} | u_v \rangle |^2$$

avec

$$k_{c,\perp} \approx k_{v,\perp}$$

Le second terme donne les mêmes règles de sélections optiques que précédemment ; le premier terme impose par ailleurs que le recouvrement des fonctions enveloppes des bandes de valence et de conduction soit non nul. Pour un puits symétrique de type I, la transition ne sera possible qu'entre état de même parité dans le puits.

Si on considère maintenant l'injection de porteurs polarisés en spin, une différence importante apparaît avec le cas de GaAs massif. L'étude réalisée section 1.2.1 nous a permis de montrer en effet que dans la couche de mouillage, le confinement selon l'axe de croissance ajouté aux contraintes repoussent la bande de trous légers très loin en énergie. Cette forte levée de dégénérescence implique en première approximation qu'une excitation polarisée circulairement dans le bas de la couche de mouillage ne crée que des trous lourds et donc d'après la figure 1.5 que des électrons de même orientation de spin.

On peut cependant s'interroger sur l'influence du mélange des fonctions d'onde à $k_{\perp} \neq 0$ (cf section 1.2.2) de trous lourds et légers sur l'efficacité de l'injection d'électrons de même spin. A. Twardowski [5] a repris cette modélisation des fonctions d'onde du trou dans un puits quantique et a estimé le taux d'injection d'électrons de même spin en fonction de l'énergie d'excitation en prenant en compte ce mélange. Il obtient un taux proche de 100% tant que l'énergie d'excitation reste inférieure à l'énergie du premier niveau de trous légers. Ces considérations nous permettront par la suite d'estimer qu'en excitant dans le bas de la couche de mouillage, on introduit une forte

majorité d'électrons de même spin. En conclusion, il faudra retenir qu'exciter par exemple $\sigma+$ ($\sigma-$) dans la couche de mouillage permet d'injecter des électrons avec un spin *down* (*up*).

1.4.3 Application aux boîtes quantiques

Le raisonnement précédent s'applique également aux boîtes. La probabilité de transition interbande est proportionnelle à $|\langle \Psi_v | \Psi_c \rangle \langle u_c | \vec{e} \cdot \vec{p} | u_v \rangle|^2$. Le recouvrement des fonctions enveloppe impose que seules les transitions de même nombre quantique l , (S-S, P-P, ...) sont permises dans le cas d'une boîte à symétrie de révolution. L'élément de matrice dipolaire qui met en jeu les fonctions de Bloch impose les mêmes règles de polarisation que précédemment. On comprend donc qu'en prenant le langage de l'exciton, si ce dernier a sur le niveau fondamental un moment angulaire $|J_z\rangle = |\pm 1\rangle = |j_z = \pm 3/2, s_z = \mp 1/2\rangle$, il peut luminescer d'après les règles de sélection. On comprend ainsi le qualificatif de brillants pour les excitons $J_z = \pm 1$ et de noirs pour $J_z = \pm 2$.

1.4.4 Rôle de l'anisotropie

L'étude de la structure fine de l'exciton, section 1.2.3.2, nous a appris que toute réduction de symétrie par rapport à D_{2d} lève la dégénérescence de l'exciton brillant $J_z = \pm 1$ en deux états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ qui s'écrivent comme une combinaison linéaire : $1/\sqrt{2}(|1\rangle \pm e^{i\varphi}|-1\rangle)$. La recombinaison radiative d'un de ces états donne une luminescence polarisée linéairement, ce qui s'observe aujourd'hui couramment en spectroscopie de boîte unique.

Une expérience récente réalisée dans le groupe de X. Marie et T. Amand par M. Sénes a mis en évidence l'influence de ce splitting sur le taux de polarisation circulaire de luminescence : Celle-ci consiste à exciter $\sigma+$ quasi-résonant sur la transition fondamentale d'un ensemble de boîtes, et à observer l'évolution temporelle du taux de polarisation circulaire. L'état fondamental $J_z = 1$ ainsi créé à l'instant initial comme une superposition cohérente d'états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ va évoluer sous forme de battements

quantiques entre les états $J_z = \pm 1$. La période de Rabi de ces battements est donnée par $T = h/\delta_2$, avec δ_2 le splitting entre les états $|J_z\rangle = |\pm 1\rangle$. L'observation de ces battements est rendue difficile sur un ensemble de boîtes en raison de la distribution des valeurs de δ_2 . Ils ont donc néanmoins pu être observés récemment par M. Sénes et également par le groupe de M. Skolnick à Sheffield (par des mesures pompe sonde de la transmission différentielle). Les résultats sont présentés figure 1.6.

Ce mécanisme est très efficace pour relaxer temporellement le spin d'un exciton ; si l'excitation permet de former une superposition cohérente de $|J_z\rangle = |\pm 1\rangle$ sur le niveau fondamental de la boîte, les battements provoquent une polarisation moyennée dans le temps nulle. On ne peut dès lors pas étudier l'orientation de spin par la mesure de la polarisation de luminescence intégrée dans le temps.

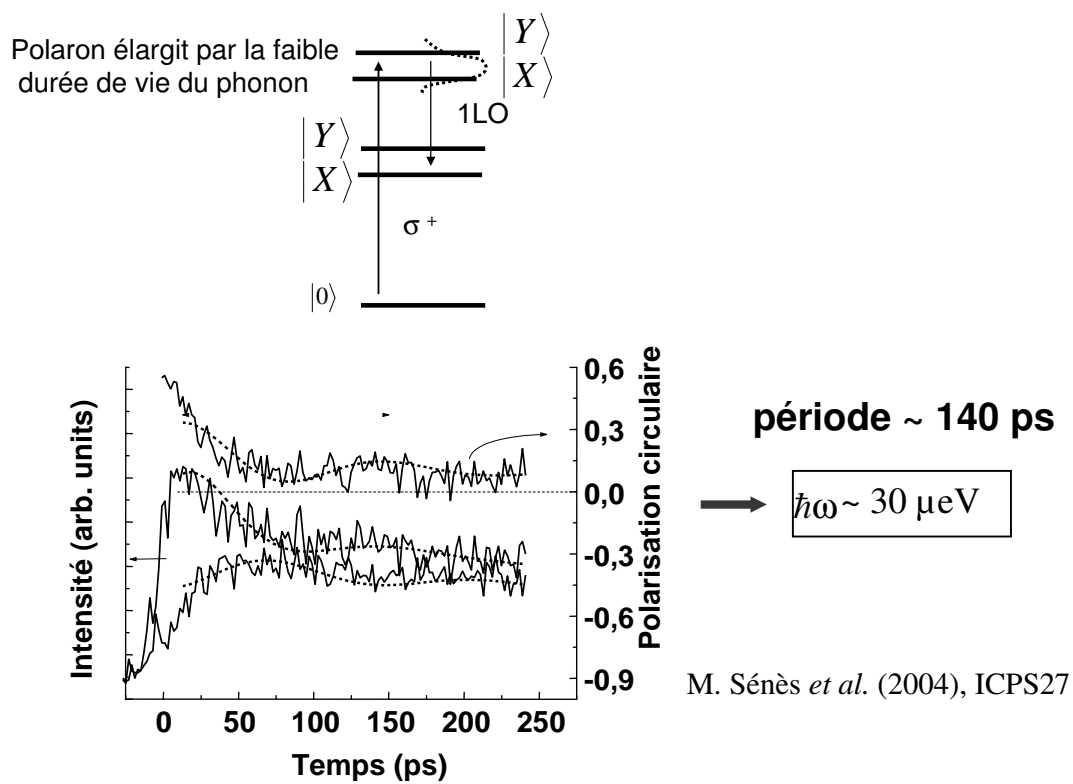


FIG. 1.6 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes sous excitation $\sigma+$ quasi-résonante à un phonon LO.

1.4.5 Cas des boîtes chargées

Pour pouvoir étudier un mécanisme de relaxation du spin du trou ou de l'électron qui soit intrinsèque au porteur considéré, il faut pouvoir disposer de boîtes contenant un électron ou un trou seul, ou un complexe qui supprime les battements quantiques de l'exciton. Ceci sera atteint par la suite en travaillant sur des boîtes chargées. On s'intéressera dès lors non pas à la polarisation de l'exciton mais à celle du trion composé ou bien de deux électrons et d'un trou (noté X^-), ou bien de deux trous et d'un électron (X^+). L'état fondamental pour X^- par exemple, est composé d'un trou sur le niveau S et de deux électrons de spins antiparallèles sur le niveau S. Cette configuration de spins implique que les interactions d'échange entre le trou et les deux électrons s'annulent :

$$H_{\text{échange}} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i \hat{j}_i + b_i \hat{j}_i^3) (\overline{\sigma}_i^1 + \overline{\sigma}_i^2)$$

le niveau fondamental est donc deux fois dégénéré du fait des deux orientations possibles du spin du trou. La polarisation circulaire de luminescence sera donc fixée par l'orientation du spin du trou.

Plusieurs informations peuvent être directement déduites de l'étude de cette polarisation :

- ◆ Si on réussit à créer initialement dans une boîte un trion X^- avec un trou orienté, l'étude résolue en temps de la polarisation de luminescence de ce trion renseigne sur l'évolution de l'état de spin du trou et donc sur les mécanismes de relaxation intrinsèques du spin du trou. Il en serait de même avec X^+ et on tirerait dès lors des informations sur la relaxation de spin de l'électron.
- ◆ L'observation d'un taux de polarisation circulaire de luminescence non nul pour ces trions X^- impliquerait qu'on laisse dans les boîtes après la recombinaison des électrons dont le spin est orienté (dans l'état opposé à celui de l'électron qui a donné lieu à la recombinaison). Ceci constituerait un moyen de créer initialement dans une boîte un électron au spin orienté, dont l'évolution ultérieure, comme

dans le cas du trion ne serait gouvernée que par des mécanismes intrinsèques de relaxation du spin de l'électron.

Ces trions seront obtenus grâce à l'injection optique d'un exciton dans des boîtes chargées avec un électron ou un trou. Le processus de chargement des boîtes dépendra des systèmes étudiés par la suite et sera donc expliqué dans les chapitres suivants.

Le chapitre qui suit présente les études réalisées sur des ensembles de boîtes chargées n par dopage chimique, tandis que les deux derniers chapitres présentent des résultats obtenus sur boîtes uniques, dans un système où la charge des boîtes est contrôlée par une tension de grille.

Chapitre 2

Polarisation de luminescence d'un ensemble de boîtes dopées n

Ce chapitre présente les mesures effectuées tout d'abord par S. Cortez puis par moi même sur les systèmes de boîtes dopées en vue de tirer des informations sur le comportement du spin électronique dans les boîtes.

2.1 Observation expérimentale d'un taux de polarisation négatif

2.1.1 Photoluminescence résolue en polarisation

Les études menées par Sebastien Cortez ([18]) sur la luminescence de boîtes quantiques dopées n ont révélé un comportement surprenant du taux de polarisation circulaire. Ce dernier s'est avéré être négatif lorsque l'excitation s'effectuait dans la couche de mouillage.

Observer un taux de polarisation négatif est tout à fait inhabituel. Un tel signe s'observe habituellement lorsque l'excitation, par exemple, a lieu sur un état de trous légers et la recombinaison sur un état de trous lourds (ou vice versa, voir [20]) ; mais

une telle situation ne peut avoir lieu dans le système de boîtes ; nous avons montré au chapitre 1 que l'excitation dans la couche de mouillage et la luminescence ne font intervenir que des trous lourds.

Cette polarisation négative tire en fait son origine de la présence d'électrons de dopage. Cette première partie du chapitre 2 rappelle et complète les mesures réalisées par Sebastien Cortez en vue de comprendre pourquoi. Elle donne également en détail le mécanisme suggéré pour expliquer un tel taux.

Des expériences de photoluminescence résolue en polarisation ont été réalisées sur un premier échantillon de boîtes quantiques dopées n. La structure de cet échantillon, appelé *B1* par la suite, consiste en une superposition de 20 plans de boîtes d'InAs/GaAs séparés les uns les autres par 40 nm de GaAs. La densité moyenne de boîtes est de $4.10^{10} cm^{-2}$. Un plan de dopage δ (*Si* $8.10^{10} cm^{-2}$) est situé 20\AA sous chaque plan de boîtes. Ce dopage apporte un nombre moyen d'électrons par boîte compris entre 1 et 2. La distribution de ces électrons dans les boîtes va dépendre de la dispersion inhomogène de la taille des boîtes. On gardera en tête par la suite qu'on peut avoir des boîtes contenant 1, 2 ou 3 électrons.

Le spectre de photoluminescence à 10 K est obtenu en excitant l'échantillon grâce à un laser Ti :Saphire continu, polarisé circulairement à l'aide d'une lame quart d'onde, et à l'énergie de la couche de mouillage (1.44 eV). La photoluminescence est détectée à l'aide d'un photomultiplicateur à photocathode PM-S1 couplé à un double spectromètre. Des mesures en polarisation sont réalisées par une lame quart d'onde et un polariseur placés devant l'entrée du spectromètre. Par la suite, l'excitation sera par convention polarisée circulairement $\sigma+$ et on définira le taux de polarisation P par l'expression suivante :

$$P = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-}$$

avec I_+ l'intensité de luminescence polarisée circulairement $\sigma+$.

La figure 2.1 présente les principaux résultats pour une puissance d'excitation comprise entre $10 W.cm^{-2}$ et $10 kW.cm^{-2}$. On ne voit apparaître sur cette figure que l'état fondamental pour des faibles puissances d'excitation. Il sature pour une puissance de

$100W.cm^{-2}$; les transitions P et D apparaissent alors progressivement au fur et à mesure que la puissance augmente. Le résultat important de cette étude est l'observation d'un taux de polarisation négatif. L'encadré de la figure 2.1 montre son évolution en fonction de la puissance. Nul à faible puissance, il atteint sa valeur négative extrême de -25% pour la puissance d'excitation qui correspond au régime où l'état fondamental est saturé. On peut interpréter cette dépendance de la façon suivante.

- ◆ Pour une faible puissance de $10W.cm^{-2}$, le nombre de photons photoinjectés par unité de surface est entre 100 et 1000 fois inférieur à la densité de boîtes. Les paires photocréées donnant des porteurs libres dans la couche de mouillage, il est peu probable qu'une même boîte capture à la fois un électron et un trou photocréés. La luminescence est donc due à la recombinaison d'un électron issu du dopage, non polarisé en spin, et d'un trou photocréé dont on a vu au chapitre 1 qu'il pouvait légitimement être considéré comme dépolarisé. La luminescence est donc non polarisée.
- ◆ Quand la puissance augmente, la probabilité pour une même boîte de capturer à la fois un électron et un trou photocréés augmente. Sachant que ce taux de polarisation atteint son extremum quand l'état fondamental des boîtes sature, il est légitime de considérer que ce taux de polarisation négatif apparaît quand les boîtes possèdent au moins une paire électron-trou photocréée et un électron du dopage
Sébastien Cortez avait montré que pour un échantillon non dopé, le taux de polarisation est nul pour une puissance d'excitation similaire, mettant ainsi en évidence l'importance du dopage dans l'observation de ce signe.
- ◆ Lorsque la puissance augmente à nouveau, l'état fondamental, dégénéré en spin devient rempli et le taux de polarisation diminue.

2.1.2 Mesures résolues en temps

Les mesures de photoluminescence ([18]) résolues en temps ont été faites sur le même échantillon. Elles sont présentées figure 2.2 .

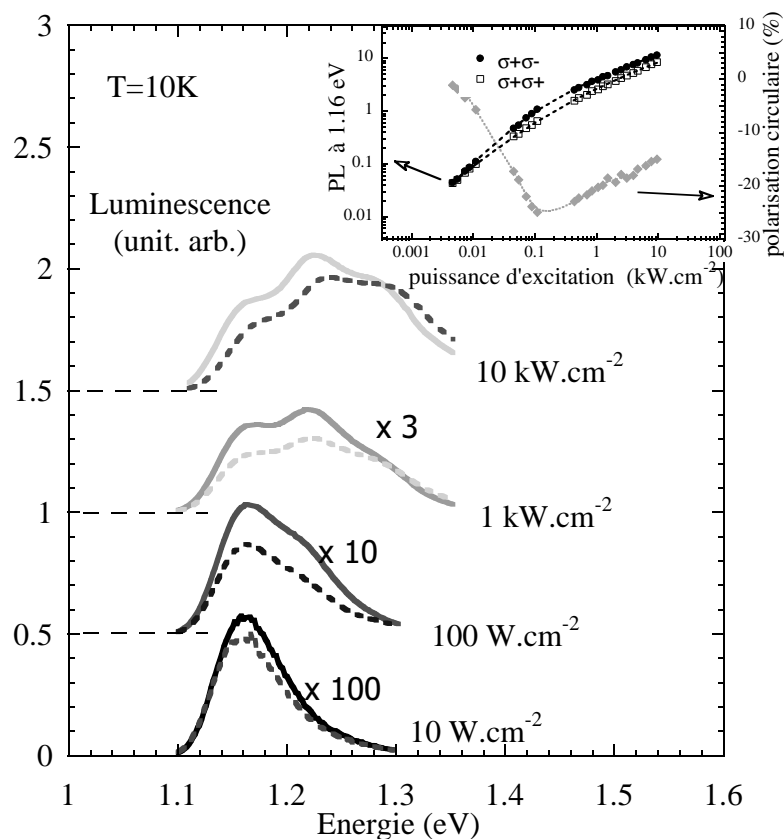


FIG. 2.1 – σ^- (trait plein) et σ^+ (trait pointillé) Spectre de photoluminescence résolue en polarisation sous excitation polarisée σ^+ dans la couche de mouillage. Encadré : Intensité de photoluminescence et taux de polarisation à 1.16eV.

La dynamique de la polarisation est tout à fait inhabituelle également ; le taux est tout d'abord positif puis il décroît très rapidement pour devenir négatif au bout d'une quinzaine de picosecondes ; la diminution se poursuit ensuite progressivement pendant toute la durée de la recombinaison radiative pour atteindre la valeur finale de -45% . On retrouve dans cette expérience un taux de polarisation négatif moyen de -25% . On peut noter par ailleurs que le taux de polarisation positif initial disparaît avant même la fin de la montée du signal de luminescence. Ce taux pourrait donc être associé à l'absorption de trous polarisés sur le niveau fondamental de la boîte et d'électrons hauts en énergie. Les trous de spin up et les électrons pourraient se recombiner et expliquer l'observation d'un taux positif immédiatement après l'excitation.

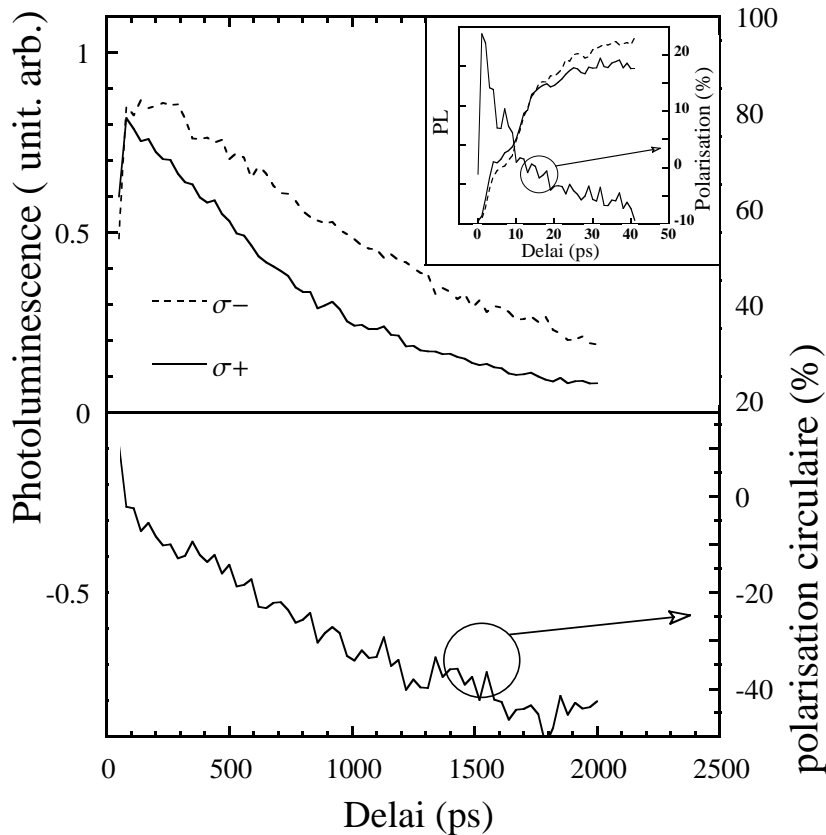


FIG. 2.2 – Photoluminescence et taux de polarisation résolus en temps. Détection à l'énergie de l'état fondamental et excitation polarisée ($\sigma+$) à 1.44 eV

2.2 Interprétation

Il nous faut maintenant comprendre pourquoi on observe un signe négatif pour ce taux de polarisation. Les observations expérimentales nous informent qu'une polarisation non nulle s'explique par la présence simultanée d'au moins un électron photocréé, seul porteur dont le spin est orienté, et d'au moins un électron issu du dopage, dépolarisé. L'observation d'une polarisation non nulle pour des puissances d'excitation permettant la luminescence d'états excités laissent suggérer que le mécanisme responsable de ce signe pourrait faire intervenir plusieurs électrons photocréés dans les boîtes. Ceci dit, par soucis de simplification, nous allons nous pencher sur la configuration où seule une paire électron trou photocréée et un électron issu du dopage

sont présents dans une majorité de boîtes. On étudiera ultérieurement le cas d'une boîte possédant plusieurs électrons de dopage. Dans le cas présent, on a affaire à un trion composé de deux électrons et un trou. La structure fine du trion est présentée dans la première partie de cette section. Elle permet d'introduire dans la seconde partie une explication plausible des phénomènes observés.

2.2.1 Structure fine du trion chaud

Le trion thermalisé est constitué de deux électrons dans une configuration singulet, et d'un trou. Contrairement à l'exciton, ce niveau fondamental du trion ne possède pas de structure fine car les interactions d'échange entre un même trou et deux électrons sur un même niveau et de spin opposé s'annulent. En revanche, elles ne s'annulent pas si un des électrons est sur le niveau excité P. On a alors affaire au trion chaud.

Dans une boîte quantique, l'intégrale d'échange entre deux particules identiques est bien plus forte que celle entre deux particules différentes. Ainsi, le "splitting" caractéristique de l'interaction d'échange électron S électron P est $\Delta_{ee} = 5meV$ (voir résultats expérimentaux de B. Urbaszek [21]), tandis que celui de l'interaction électron trou vérifie $\Delta_{eh} = 0.1$ à $1meV$. Il faut donc voir la structure fine du trion chaud comme une paire d'électrons corrélés, perturbée par l'interaction électron trou.

L'étude classique des niveaux d'énergie de l'atome d'hélium, constitué de deux électrons, nous apprend que l'interaction d'échange électron électron lève la dégénérescence des niveaux d'énergie en un singulet et un triplet. Il en est de même dans nos boîtes, ce qui est représenté figure 2.3 : l'état singulet excité sera noté S_0^* et les états triplet T_0 , T_{-1} et T_1 . L'interaction d'échange électron trou va agir quant à elle sur les niveaux triplet ainsi formés et provoquer une nouvelle levée de dégénérescence.

Cette interaction a été introduite au premier chapitre dans le cas d'une paire électron trou.

$$H_{e,h}^{ex} = 2\delta_0 j_z^{ps} \sigma_z + \delta_2 (j_x^{ps} \sigma_x - j_y^{ps} \sigma_y) + \delta_1 (j_x^{ps} \sigma_x + j_y^{ps} \sigma_y)$$

Avec \vec{j}^{ps} l'opérateur du pseudo-spin du trou lourd (on associe la valeur $j_z^{ps} = \frac{1}{2}$ au moment angulaire $-\frac{3}{2}$) et $\vec{\sigma}$ celui du spin de l'électron (en unité de \hbar). Rappelons que le second terme est dû à l'anisotropie et que $\delta_1 \ll \delta_2$.

L'interaction d'échange électron-électron peut s'écrire sous la forme d'un hamiltonien de Heisenberg :

$$H_{e,e}^{ex} = -\Delta_{ee} \vec{s}^1 \cdot \vec{s}^2$$

On en déduit la forme générale de l'hamiltonien d'échange (voir [22]) dans la base des 8 états du trion chaud ($S_0^* \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_0 \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_1^* \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_{-1}^* \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$). Avec S_v^\uparrow l'état du trou de spin $-3/2$.

$$\begin{aligned} H_{e,e,h}^{ex} = & \Delta_{ee} \left(\frac{3}{4} - \frac{I^2}{2} \right) + 2\widetilde{\Delta}_0 j_z^{ps} I_z + \widetilde{\Delta}_2 (j_x^{ps} I_x - j_y^{ps} I_y) + \widetilde{\Delta}_1 (j_x^{ps} I_x + j_y^{ps} I_y) \\ & + 2\widetilde{\eta}_0 j_z^{ps} K_z + \widetilde{\eta}_2 (j_x^{ps} K_x - j_y^{ps} K_y) + \widetilde{\eta}_1 (j_x^{ps} K_x + j_y^{ps} K_y) \end{aligned}$$

avec $\vec{I} = \vec{\sigma}^1 + \vec{\sigma}^2$, les électrons étant représentés par les indices 1 et 2, $\vec{K} = \vec{\sigma}^1 - \vec{\sigma}^2$ et les constantes $\widetilde{\Delta}_i = (\delta_i^1 + \delta_i^2)/2$ et $\widetilde{\eta}_i = (\delta_i^1 - \delta_i^2)/2$, ($i = 0, 1, 2$).

La figure 2.3 montre la structure fine obtenue dans le cas d'une boîte symétrique ($\delta_i^1 = \delta_i^2 = 0$, $i = 1, 2$) et en négligeant le terme $\widetilde{\eta}_0$. L'état excité à deux électrons est formé de trois états triplets T_1 , T_0 et T_{-1} et d'un état singulet S_0^* tandis que l'état fondamental est formé d'un état singulet S_0 . Le couplage avec le trou lève la dégénérescence des états triplet. Chaque état résultant est doublement dégénéré du fait des deux orientations possibles du trou lourd.

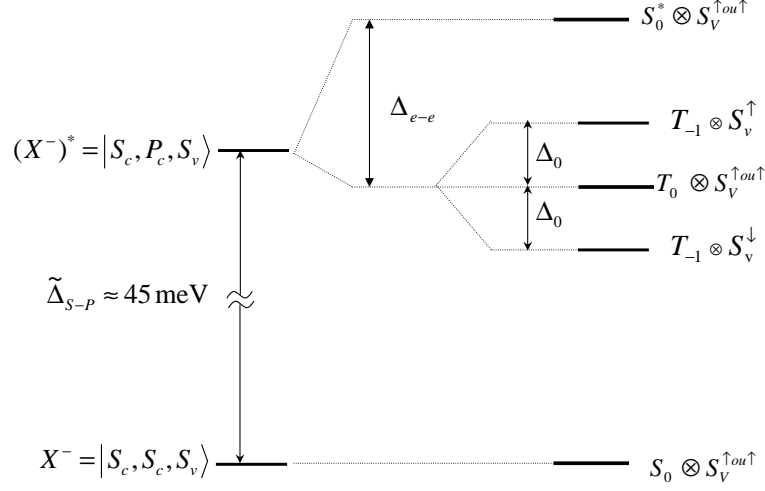


FIG. 2.3 – Structure fine du trion excité pour une boîte isotrope et un électron photoinjecté dans l'état *down*.

2.2.2 Dynamique de recombinaison du trion chargé

On considère donc une boîte isolée dopée avec un seul électron et qui capture une paire électron trou photocréée par une excitation polarisée $\sigma+$. L'étude présentée au premier chapitre nous permet de comprendre que la grande majorité des électrons photocréés ont un spin *down*. Nous partons également de l'hypothèse que l'électron photocréé conserve son orientation de spin durant les premières phases de capture et de thermalisation dans la boîte. En revanche, les mécanismes de relaxation du spin du trou restent suffisamment efficaces dans la couche de mouillage pour considérer que le spin du trou est entièrement dépolarisé en arrivant dans la boîte.

L'électron photocréé relaxe en quelques picosecondes sur l'état P et ressent l'interaction de Coulomb avec l'électron résident. Le trou relaxe quant à lui sur l'état fondamental de la bande de valence.

On est donc en présence d'un trion "chaud" dont la structure fine est présentée figure 2.3. L'orientation du spin de l'électron résident étant aléatoire, celle du spin photoinjecté étant *down*, l'état de la boîte est un mélange statistique des quatre états $S_0^* \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_{-1} \otimes S_v^{\uparrow}$, $T_0 \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_{-1} \otimes S_v^{\downarrow}$. Une représentation de ces quatre états à

partir des états à une particule est donnée figure 2.4.

Si on considère séparément l'évolution de ces quatre états, on voit tout de suite que du fait du principe de Pauli, la relaxation des états $T_0 \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$, $T_{-1} \otimes S_v^{\uparrow}$ et $T_{-1} \otimes S_v^{\downarrow}$ vers l'état fondamental n'est pas immédiate. Nous avons vu par ailleurs au chapitre 1 page 33 que Khaetskii ([15]) trouve un ordre de grandeur extrêmement grand (supérieur à $100\mu s$) pour le temps de thermalisation avec renversement du spin d'un électron depuis le premier niveau excité. On ne peut donc pas invoquer un tel mécanisme pour expliquer la thermalisation de ces trois états. Il ne considère cependant comme système qu'un électron seul dans une boîte. Dans le cas de notre système, deux électrons et un trou sont présents.

L'état $S_0^* \otimes S_v^{\uparrow ou \downarrow}$ peut en revanche relaxer directement vers le fondamental. Le taux de polarisation de luminescence associé à la recombinaison de ce dernier état est nul compte tenu de l'orientation aléatoire du spin du trou. $T_0 \otimes S_v^{\downarrow ou \uparrow}$ donne de la même façon un taux de polarisation nul.

La polarisation négative observée est donc due à l'évolution des deux états triplets mentionnés précédemment. Il reste à comprendre quels mécanismes peuvent les faire thermaliser. Le mécanisme de spin flip étudié par Khaetskii ne suppose pas la présence du trou. Voyons donc quelle peut être l'influence du trou.

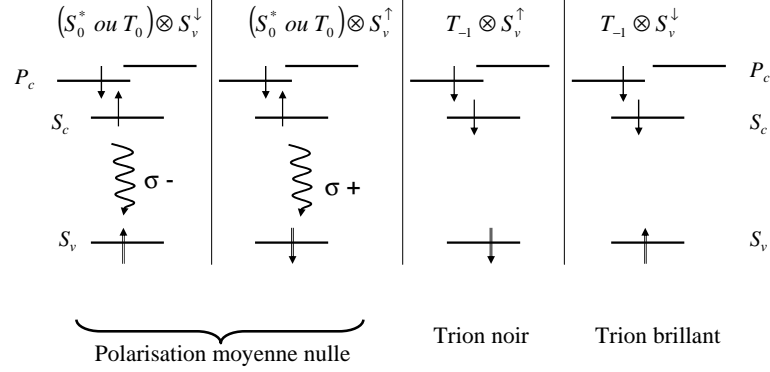


FIG. 2.4 – Représentation à partir des états à une particule des différents états observables dans les boîtes

2.2.2.1 Evolution de l'état brillant

Intéressons nous tout d'abord à l'état $T_{-1} \otimes S_v^\downarrow$. On le qualifie de brillant du fait qu'un processus de recombinaison radiative peut intervenir directement entre un des électrons et le trou. Ce mécanisme entraîne une émission polarisée positivement qui n'explique en rien l'évolution temporelle du taux.

Un autre processus peut faire évoluer ce trion brillant : si on exprime l'hamiltonien de la section 2.2.1, page 55, dans la base formée par les 10 états obtenus à la section 2.2.1, on observe un couplage entre les états $T_{-1} \otimes S_v^\downarrow$ et $S_0^* \otimes S_v^\uparrow$:

$$\langle S_0^* \otimes S_v^\uparrow | H_{e,e,h}^{ex} | T_{-1} \otimes S_v^\downarrow \rangle = \frac{\tilde{\eta}_2}{\sqrt{2}}$$

Ce couplage mélange les états du trion. Au premier ordre avec la méthode des perturbations, on obtient :

$$|T_{-1} \otimes S_v^\downarrow \rangle^{(1)} \simeq |T_{-1} \otimes S_v^\downarrow \rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\tilde{\Delta}_2}{\tilde{\Delta}_0} |T_0 \otimes S_v^\uparrow \rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\tilde{\eta}_2}{\Delta_{ee} - \tilde{\Delta}_0} |S_0^* \otimes S_v^\uparrow \rangle$$

L'état $|S_0^* \otimes S_v^\uparrow \rangle$ pouvant relaxer vers le fondamental, il entraîne par le biais de ce couplage la relaxation de l'état brillant. Ce mécanisme peut être vu de façon simplifiée comme un processus dit "flip flop" pendant lequel un des deux électrons et le trou subissent simultanément un renversement de leur spin suivi d'une relaxation

irréversible vers le fondamental. La recombinaison radiative donne alors un photon polarisé $\sigma-$. Ce mécanisme pourrait donc expliquer le renversement du taux de polarisation, la question restante étant de savoir en combien de temps ce mécanisme agit. Le temps de relaxation de l'état $|T_{-1} \otimes S_v^\downarrow \rangle^{(1)}$ à l'état $|S_0 \otimes S_v^\uparrow \rangle$, noté τ_{-1} , est lié au temps de relaxation τ_0 de l'état $|S_0^* \otimes S_v^\uparrow \rangle$ par la relation :

$$\frac{1}{\tau_{-1}} = \frac{\tilde{\eta}_2^2}{2(\Delta_{ee} - \tilde{\Delta}_0)^2} \frac{1}{\tau_0}$$

B. Urbaszek [23] a mesuré par des mesures de spectroscopie sur boîtes uniques la largeur d'une des raies de la structure fine de l'exciton doublement chargé X^{2-} (voir chapitre 3). Cette largeur est gouvernée par la durée de vie de l'état final de X^{2-} , qui n'est autre que le doublet d'électrons dans l'état S_0^* . Cette mesure nous permet d'avoir une estimation de τ_0 . B. Urbaszek mesure une largeur de $300\mu eV$, ce qui nous donne $\tau_0 = 2ps$. Il reste à estimer $\tilde{\eta}_2$. $\tilde{\eta}_2$ est la différence entre les termes d'échange anisotrope entre un trou et un électron dans l'état P et S. G. Bester ([24]) a estimé le terme Δ_2 d'interaction d'échange anisotrope entre un électron P et un trou S et obtient une valeur 10 fois supérieure à celle obtenue entre un électron S et un trou S. Si cette dernière vaut la valeur faible de $10\mu eV$, en prenant alors $\tilde{\eta}_2 = 100 - 10\mu eV$, on obtient un temps de $10ns$. Avec de telles valeurs, on comprend que ce mécanisme ne devrait à priori pas intervenir pendant la recombinaison radiative. Cependant, une incertitude existe sur la valeur de $\tilde{\eta}_2$ et on ne peut pas conclure définitivement sur la validité de cette explication du taux de polarisation négatif.

2.2.2.2 Evolution de l'état noir

Considérons désormais l'état noir, $|T_{-1} \otimes S_v^\uparrow \rangle$. Il peut évoluer de la même façon que l'état brillant et donner alors une recombinaison $\sigma+$. Cependant, une telle évolution ne peut pas expliquer la diminution continue du taux de polarisation observée au cours du temps puisqu'elle conduirait à un taux de polarisation positif. Par ailleurs, d'après Bayer et al. [10], Δ_1 n'est dû qu'à l'interaction d'échange courte portée, l'interaction d'échange longue portée n'agissant quant à elle que sur l'état

brillant et fournissant même la contribution la plus importante au terme Δ_2 . On peut donc légitimement supposer que pour nos boîtes, $\Delta_1 \ll \Delta_2$, rendant ce mécanisme de flip flop inopérant pour faire évoluer l'état noir. Il faut donc considérer une autre évolution possible pour le trion noir.

Seuls deux mécanismes peuvent expliquer son évolution tout en respectant l'évolution observée du taux de polarisation :

1. Le premier serait le mécanisme étudié par Khaetskii ([15]) et déjà mentionné. L'électron sur l'état P thermalise en reversant son spin grâce au terme de Dresselhaus. Ce mécanisme serait cependant très peu efficace (Un ordre de grandeur serait $100\mu s$)
2. Le second serait dû à l'interaction hyperfine qui pourrait permettre la thermalisation en faisant relaxer le spin électronique.

Dans chaque cas, le trou reste dans l'état bas et la luminescence est polarisée négativement.

A noter que ces mécanismes ne peuvent en rien expliquer l'évolution des autres états.

Le trou restant spectateur , on n'observerait en effet aucun taux de polarisation.

On peut conclure de l'étude de ce cas à 1 électron qu'il peut effectivement conduire à un taux de polarisation négatif. Ceci dit, l'ordre de grandeur des temps caractéristiques obtenus laisse suggérer à l'heure actuelle que ce modèle ne peut expliquer l'apparition d'un taux négatif en quelques picosecondes.

2.2.3 Généralisation

Nous n'avons jusqu'à présent considéré que les boîtes contenant 1 électron. Plusieurs aspects nous incitent cependant à penser que les boîtes contenant plusieurs électrons pourraient donner un taux de polarisation négatif.

1. Une étude menée par J.N.Isaia ([8]) sur le même échantillon montre tout d'abord que ce dernier ne contient qu'un pourcentage minoritaire de boîtes à un électron, la plupart en possédant deux. Ceci irait dans le sens des études menées par X.

Marie. Il a pu effectuer des mesures d'absorption en résonance sur le niveau fondamental des boîtes, signe que ce niveau n'est pas entièrement occupé par des électrons de dopage, mais ces mesures se sont avérées difficiles, signe qu'une minorité de boîtes ont un niveau fondamental partiellement rempli.

2. On observe sur la figure 2.1 que le taux de polarisation négatif persiste pour des puissances d'excitation permettant la luminescence des états excités et que ces derniers luminescent eux même avec un taux de polarisation circulaire négatif.
3. Enfin, des mesures de taux de polarisation circulaire ont été menées sur un ensemble d'échantillons de boîtes quantiques similaires se distinguant les uns des autres par différentes concentrations du dopant. Ils présentent tous aussi un taux de polarisation négatif malgré un nombre moyen d'électrons par boîte compris entre 0 à 3. Une étude plus détaillée de ces échantillons sera faite dans la prochaine section.

Quand on essaie de connaître le nombre d'électrons introduits par dopage dans chaque boîte, on est face à deux inconnus :

1. Tout d'abord, le transfert électronique des dopants vers les boîtes n'est pas total. Un certain nombre d'électrons vont rester piégés au niveau des atomes de silicium.
2. Par ailleurs, la distribution d'électrons ne va pas être homogène ; certaines boîtes vont contenir un électron, d'autres deux ou aucun etc . . .

Ceci dit, observer un taux de polarisation négatif pour le signal de luminescence de boîtes à dopage moyen supérieur à un électron par boîte ne peut s'expliquer que de deux façons : ou bien ce taux n'est dû qu'au pourcentage de boîtes qui possèdent un seul électron ; ou bien un second mécanisme permet d'observer ce taux pour des boîtes à plusieurs électrons.

Nous allons donc nous intéresser à cette nouvelle série d'échantillons et comprendre pourquoi la polarisation est négative.

2.2.3.1 Ensemble de boîtes multiples chargées

La série d'échantillons étudiés est constituée de 20 plans de boîtes avec une densité de 4.10^{10}cm^{-2} . Un plan de δ – dopage est situé sous chaque plan de boîtes, comme pour *B1*. Les spectres de photoluminescence résolus en polarisation sont présentés ci dessous figure 2.5. Ils ont tous été obtenus en excitant avec une diode pulsée émettant à 1.41eV et en détectant à l'aide d'un double spectromètre et d'un photomultiplicateur à cathode *S1* refroidie. Leur nom et leur concentration de dopants estimée lors de l'épitaxie sont donnés sur la figure. J.N. Isaia [8] a déterminé le nombre moyen effectif d'électrons pour trois de ces échantillons. Il obtient :

A1 0.6 électron par boîte

A2 3 électrons par boîte

A3 2.4 électrons par boîte

Les taux de polarisation circulaire mesurés à l'énergie du maximum de luminescence sont indiqués sur la figure. Ils sont tous négatifs mais les seuls significatifs sont ceux des échantillons *A2* et *A3*. (A noter qu'on devine sur les courbes qu'ils augmentent pour les hautes énergies de détection ; ceci est dû à la présence du *background* du laser qui est fortement polarisé positivement.)

On constate donc que le taux de polarisation est nettement négatif pour des concentrations d'électrons par boîtes allant de 1 à 3 ; au dessus et en dessous de ces valeurs, il est négligeable.

Quel mécanisme pourrait rendre possible l'observation d'un taux de polarisation négatif pour des boîtes possédant deux électrons de dopage ?

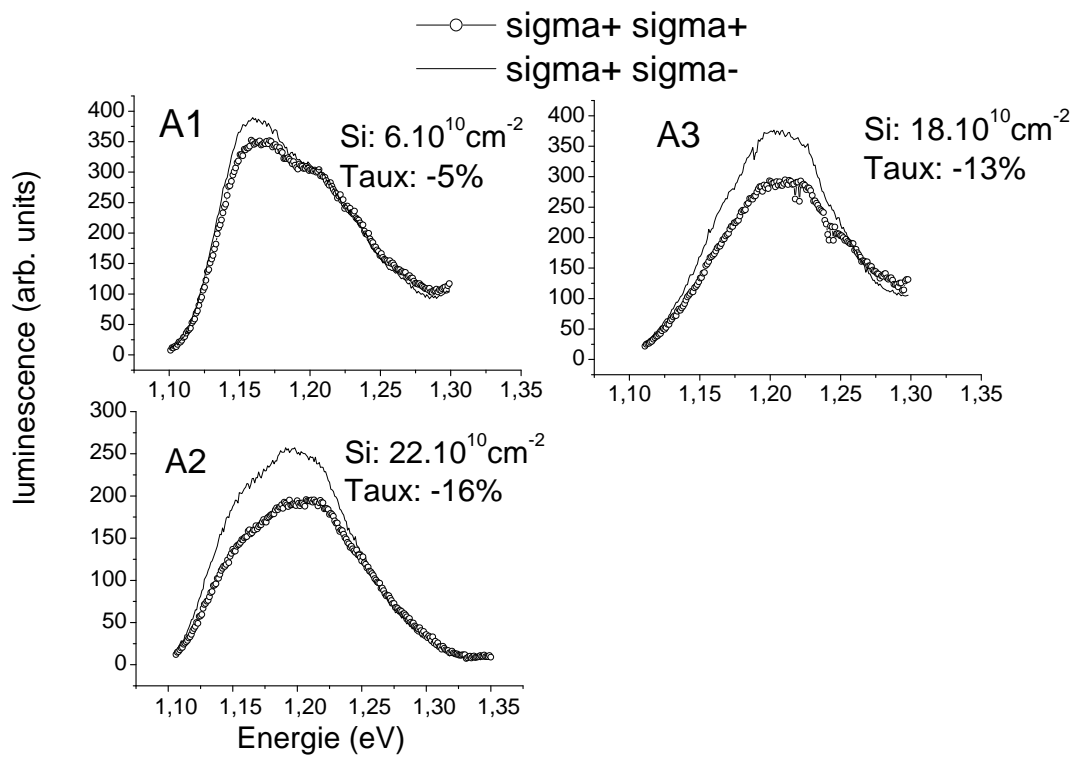


FIG. 2.5 – Photoluminescence résolue en polarisation pour trois échantillons de concentrations de dopage différentes. Les taux de polarisation circulaire donnés ont été calculés pour l'énergie correspondant au maximum de chaque courbe

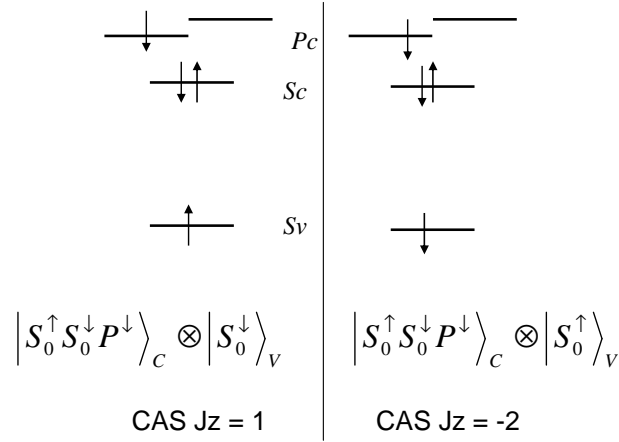


FIG. 2.6 – Représentation schématique des deux cas observables pour une boîte possédant deux électrons de dopage. J_z représente le moment angulaire selon Oz de l’exciton doublement chargé ; (on ne tient pas compte du moment orbital de l’électron sur l’état P).

2.2.3.2 Boîtes à deux électrons de dopage

Supposons comme précédemment qu’on injecte dans la boîte une seule paire électron trou, avec l’électron polarisé *down* et le trou dépolarisé suite à une excitation $\sigma+$ dans la couche de mouillage. La figure 2.6 présente de façon schématique les deux configurations possibles : le niveau fondamental électronique est entièrement occupé par deux électrons de spin opposé et on est en présence d’un ”exciton” formé d’un électron sur l’état de conduction P et d’un trou sur l’état de valence S. Les deux cas sont évidemment radiatifs mais ils sont séparés en énergie par l’interaction d’échange isotrope entre l’électron P et le trou, comme l’illustrent les résultats de B. Urbaszek [21]. La paire d’électrons située sur le fondamental est spectatrice dans cette affaire puisque l’interaction d’échange entre cette paire et l’électron P (ou le trou) est nulle.

Si on fait intervenir maintenant l’interaction d’échange anisotrope, l’évolution de ces deux états avant la recombinaison radiative va être différente.

1. Dans le cas $J = 1$ formé par un électron P et un trou de spins opposés, l'interaction d'échange anisotrope admet, comme dans le cas d'un exciton neutre dans l'état brillant, un terme à longue portée et un à courte portée. Des calculs menés par A. Zunger [24] montrent que cette interaction serait même d'un ordre de grandeur supérieure quand elle fait intervenir un électron de l'état P plutôt qu'un électron de l'état S. En thermalisant, l'exciton doublement chargé va peupler les deux états propres X et Y ainsi formés du système ; la polarisation sera donc nulle. (A noter que si l'état formé est une superposition cohérente des deux états propres du système, cet état va évoluer sous forme de battements quantiques. Moyennés au cours du temps et sur un grand nombre de boîtes, ces battements provoquent un taux de polarisation circulaire nul également.)
2. Dans le cas $Jz = -2$, l'interaction d'échange anisotrope, comme pour un exciton dans un état noir, est beaucoup plus faible. Pendant l'essentiel de la durée de la recombinaison, le trou reste dans l'état bas, permettant une recombinaison essentiellement $\sigma-$ et ainsi un taux de polarisation négatif. Ceci n'est cependant valable que si aucun mécanisme de spin flip du trou sur le niveau fondamental n'est efficace pendant l'essentiel du temps de recombinaison.

On peut donc penser qu'effectivement, les boîtes à deux électrons peuvent donner lieu à un taux de polarisation négatif.

L'interprétation du taux de polarisation de $B1$ peut donc être revue en tenant compte de la présence d'un nombre important de boîtes contenant 2 électrons. Celles-ci contribuent très certainement à la décroissance rapide du taux de polarisation en fonction du temps.

2.2.3.3 Boîtes à trois électrons

Le raisonnement précédent peut être répété dans le cas d'une boîte à trois électrons. La figure 2.7 montre les deux cas observables selon l'orientation de l'électron de dopage situé sur l'état P, en supposant toujours que l'on injecte un électron photocréé de spin *down* et un trou dépolarisé.

On se retrouve dans une situation très similaire à celle des boîtes à un électron de dopage. La paire d'électrons située sur l'état fondamental est spectatrice en terme d'interaction d'échange. On retrouve dès lors les mêmes configurations possibles de spin présentées figure 2.7.

1. Dans le cas où $Jz = \pm\frac{3}{2}$, l'électron photoinjecté forme avec l'électron résident un état singulet. La luminescence sera non polarisée.
2. Dans le cas où $Jz = +\frac{1}{2}$, on retrouve le cas du trion brillant si le splitting entre les états P_X et P_Y existe. L'interaction d'échange anisotrope entre le trou et un des électrons permet alors le renversement simultané du spin du trou et de celui d'un des électrons. Ce mécanisme est immédiatement suivi d'une relaxation de l'électron gelant ainsi sa poursuite, contrairement au cas précédent : X^{2-} . Ce cas va donc donner un taux de polarisation négatif.
3. Dans le cas où $Jz = -\frac{5}{2}$, on retrouve le cas du trion noir. Le mécanisme qui peut faire évoluer cette configuration de spin sera sans doute plus lent que la recombinaison radiative entre un électron du niveau fondamental et le trou, qui donne ici naturellement un taux de polarisation négatif.

On peut conclure de l'étude de ces boîtes que l'observation de ce taux de polarisation négatif serait une caractéristique générale des boîtes dopées. Ce taux aurait pour origine principale la grande différence de valeur que prend l'interaction d'échange anisotrope agissant sur des états noirs ou brillants.

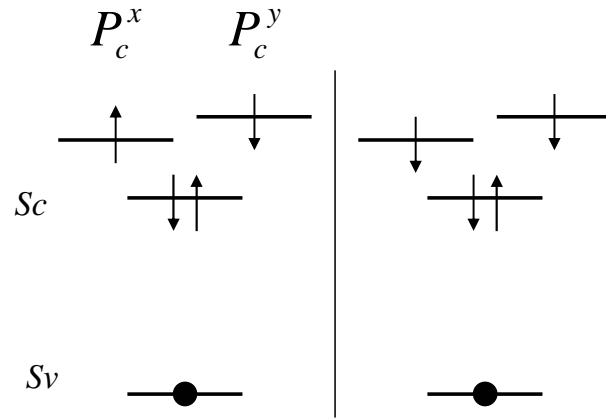


FIG. 2.7 – Représentation schématique des deux cas observables pour une boîte possédant trois électrons de dopage.

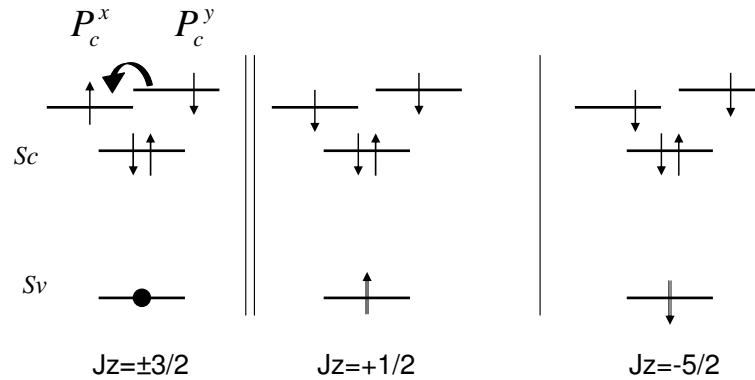


FIG. 2.8 – Evolution schématique des deux cas observables pour une boîte possédant trois électrons de dopage. J_z représente le moment cinétique total selon Oz de l'exciton triplement chargé, sans tenir compte du moment orbital des électrons P.

2.2.3.4 Ecriture du spin dans une boîte quantique

Les boîtes contenant 1 ou 3 électrons présentent l'intérêt de laisser après la recombinaison radiative des électrons (sur l'état P ou S) dont le spin est *down* puisque l'électron qui participe à la luminescence est *up*.

L'observation de ce taux de polarisation négatif serait dès lors la preuve qu'on a pu orienter dans une partie des boîtes le spin des électrons résidents.

2.3 Mémoire de spin

2.3.1 Observations expérimentales

On peut observer sur la figure 2.1, page 52, pour des puissances basses que le taux de polarisation diminue quand la puissance augmente. En plus de l'explication avancée au paragraphe 2.1.1, on peut comprendre cette observation autrement : quand la puissance augmente, la probabilité d'injecter successivement deux paires électron trou dans une même boîte augmente. On peut dès lors se retrouver dans la situation où une boîte contenant un (ou trois) électrons et dont l'électron situé sur l'état S (ou P) est déjà orienté, reçoit une deuxième paire ; mais alors, la luminescence pour cette boîte devient polarisée négativement à -100% d'après ce modèle, puisque le trion ne peut être dans ce cas que dans l'état brillant ($J_z = +1/2$ dans le cas à 3 électrons) ou noir ($J_z = -5/2$).

Cette augmentation du taux, en valeur absolue, avec la puissance peut donc être le signe d'un phénomène de mémoire de spin : quand la puissance augmente, la probabilité qu'une même boîte capte successivement deux paires électron trou augmente, et si entre les deux captures, l'orientation du spin de l'électron a été conservée, cela se traduit par une forte polarisation après la capture de la seconde paire.

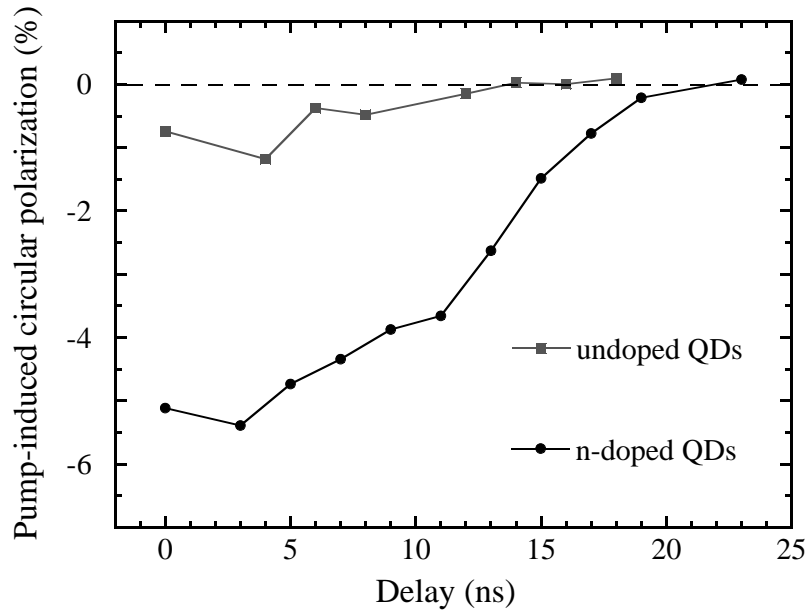


FIG. 2.9 – Taux de polarisation circulaire de la luminescence de la sonde en fonction du délai entre la pompe et la sonde. Echantillon *B1*

Sébastien Cortez a réalisé au cours de sa thèse une expérience permettant de montrer qu'on oriente bien les électrons dans les boîtes : deux diodes laser pulsées avec un taux de répétition de $80kHz$ et de largeur $5ns$ excitent successivement l'échantillon à $1.41eV$; le premier pulse, la pompe, est polarisé circulairement $\sigma+$, et permet donc d'orienter les spins d'électrons résidents ; le second pulse, la sonde, est polarisée linéairement et excite l'échantillon un certain délai après la pompe. On observe la polarisation de luminescence provoquée par la sonde. Si durant le délai entre pompe et sonde, un électron résident a perdu son orientation de spin, le taux de polarisation de luminescence de la boîte considérée sera nul puisqu'on excite linéairement ; si en revanche, le spin de l'électron résident est toujours polarisé dans l'état bas, la boîte va se retrouver ou dans l'état triplet brillant ou dans l'état singulet $|S_0^* \otimes S_v^\downarrow \rangle$ (On considère ici le cas d'un électron par boîte. Dans le cas à 3 électrons, on observerait les cas $J_z = +1/2$ et $J_z = -3/2$). Dans les deux cas, la luminescence sera polarisée $\sigma-$, et ce tant que les électrons résidents conserveront leur orientation de spin. On a donc

la possibilité de mesurer un temps de relaxation d'un ensemble de spins électroniques dans les boîtes quantiques.

La courbe obtenue par S. Cortez pour l'échantillon *B1* est donnée figure 2.9. On observe sur cette figure que la mémoire du spin est effectivement conservée pendant une quinzaine de nanosecondes. Un temps de relaxation du spin dans ce système serait d'une dizaine de nanosecondes.

Nous avons réalisé ultérieurement la même expérience avec deux lasers titane saphir pulsés synchronisés. Le montage de l'expérience est présenté figure 2.10. Le délai cette fois est limité à $12ns$ par le taux de répétition des lasers. Les puissances respectives de la pompe et de la sonde sont $1100Wcm^{-2}$ pour la pompe et $250Wcm^{-2}$ pour la sonde.

La faible largeur des pulses ($2ps$) permet des mesures plus précises de l'évolution de la polarisation de la sonde en fonction du délai. Dans l'expérience précédente, les pulses avaient une largeur de $5ns$ et l'effet mesuré était à peine plus long que le délai pendant lequel les pulses se recouvraient. Les principaux résultats sont donnés figure 2.11 pour *B1*.

On observe tout d'abord que pendant toute la durée de ($2ns$) pendant laquelle les porteurs issus des deux pulses sont présents en même temps dans la boîte et ce pour un délai nul ou proche de $12ns$, le signal de luminescence de la sonde chute à cause du phénomène de saturation de la luminescence dans chaque boîte. On constate aussi que le taux de polarisation est positif pendant cette phase où les porteurs des deux pulses sont présents. Vu le nombre de porteurs présents pendant cette phase, il est difficile d'attribuer un sens à ce taux de polarisation.

Pour un délai compris entre 2 et $10ns$, on retrouve que la luminescence de la sonde est polarisée circulairement.

Le résultat surprenant de cette expérience est qu'on n'observe aucune diminution de ce taux pendant les 10 premières nanosecondes de délai, ce qui diffère des résultats de S. Cortez.

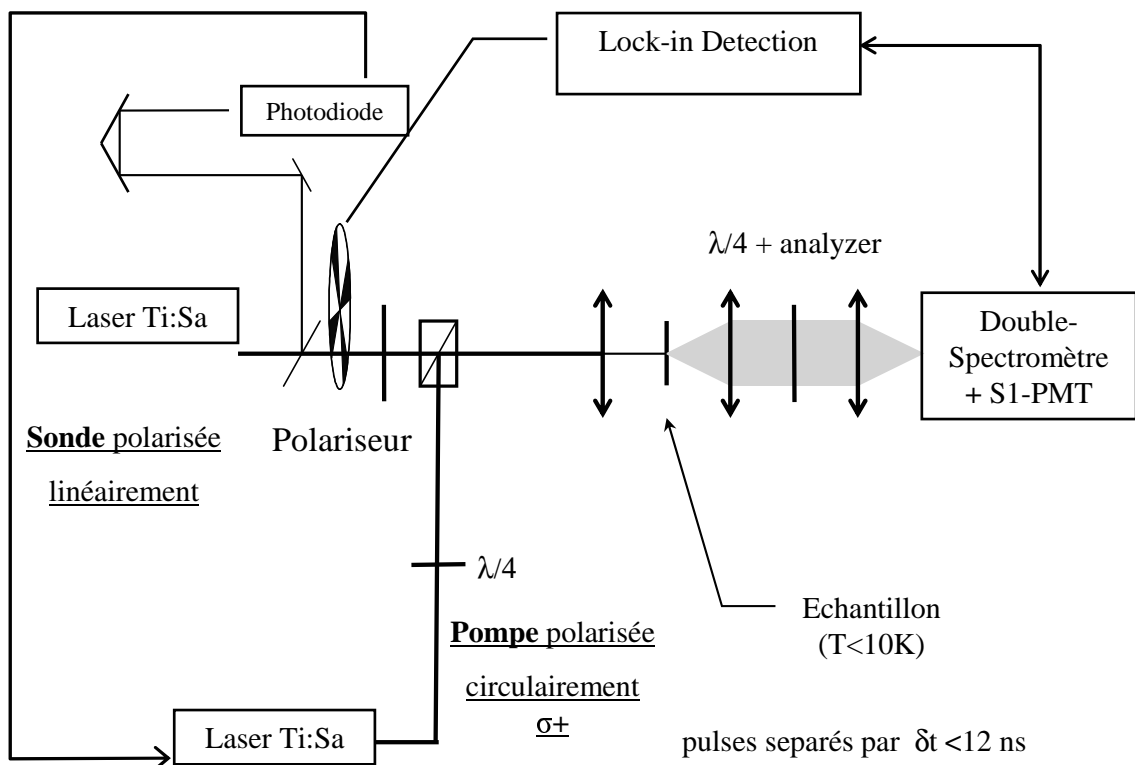


FIG. 2.10 – Montage expérimental permettant la mesure de l'effet mémoire

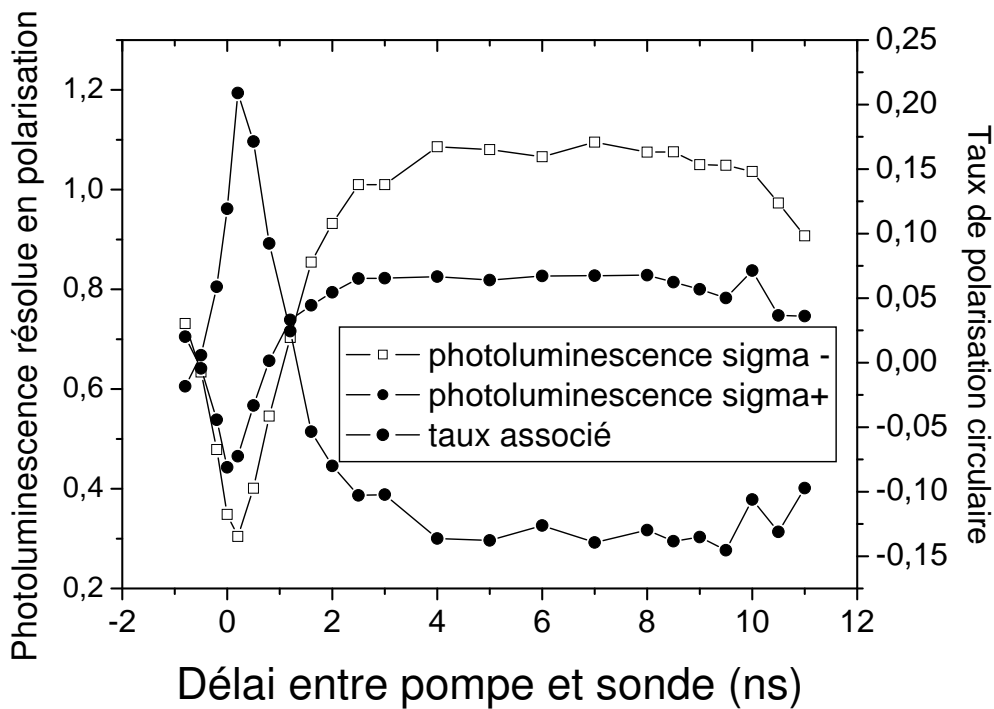


FIG. 2.11 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire et normalisée par rapport au signal de luminescence obtenu quand seule la sonde excite l'échantillon (signal de pompe coupé). Taux de polarisation correspondant.

Cette différence s'explique difficilement ; l'expérience de S. Cortez pourrait ne pas être concluante, l'effet mémoire pouvant être masqué par le recouvrement des deux pulses.

Afin de connaître l'évolution de cette mémoire de spin au delà de $10ns$ de délai, une dernière expérience a été menée en utilisant un "pulse picker" qui permet de ne sélectionner qu'un pulse sur dix et ainsi d'obtenir un taux de répétition du laser de $120ns$. Le laser est ensuite dédoublé pour créer une pompe et une sonde. Une ligne à retard composée de miroirs fixes permet de retarder le signal de la sonde de plus de $12ns$; L'effet mémoire dépendant fortement de la puissance par unité de surface des deux lasers d'une part, et de leur bon recouvrement sur l'échantillon d'autre part, il n'a pas été possible de réaliser des mesures quantitatives de l'évolution du taux

de polarisation de la sonde avec le délai. On retiendra simplement qu'un faible effet mémoire était observable pour $30ns$ de délai.

L'effet mémoire de spin a également été observé sur les échantillons $A2$ et $A3$ qui ont respectivement 3 et 2.6 électrons de dopage en moyenne d'après J. N. Isaia. Le même montage expérimental que pour $B1$ a été utilisé, voir figure 2.10. On observe également un effet mémoire jusqu'au délai maximal de $10ns$ entre la pompe et la sonde, présenté figure 2.12. Le taux induit par la pompe sur la sonde est plus faible pour $A2$ et $A3$ que pour $B1$. Cette effet mémoire s'explique aisément si on l'attribue aux boîtes possédant trois électrons résidents. Il mesure alors l'efficacité de la relaxation du spin de l'électron sur l'état P.

Cet effet mémoire peut cependant exister pour des boîtes possédant deux électrons, à condition que ceux-ci soient toujours dans l'état T_{-1} , état dans lequel ils sont susceptibles de se trouver immédiatement après l'excitation de la pompe. Cet état T_{-1} a de forte chance de ne pas thermaliser pendant le délai entre pompe et sonde. La thermalisation nécessite en effet tout d'abord le renversement du spin de l'électron sur l'état P. Ce mécanisme, étudié par Khaetskii dans le cas où l'électron est seul dans la boîte, a selon lui un temps caractéristique de l'ordre de $100\mu s$ (Voir section 1.3.2), ce qui exclut la possibilité d'un tel mécanisme ici (d'autant plus que l'interaction d'échange avec l'électron sur le niveau S rend ce mécanisme encore plus défavorable). L'effet mémoire observé sur l'échantillon $B1$ peut donc être dû aux boîtes possédant 1, 2 ou 3 électrons, contrairement à ce qui avait été suggéré au départ par S. Cortez. IL mesure cependant toujours l'efficacité des mécanismes de relaxation du spin d'un électron. L'état T_{-1} observé dans les boîtes possédant deux électrons va en effet certainement évoluer du fait de la relaxation du spin d'un de ces électrons.

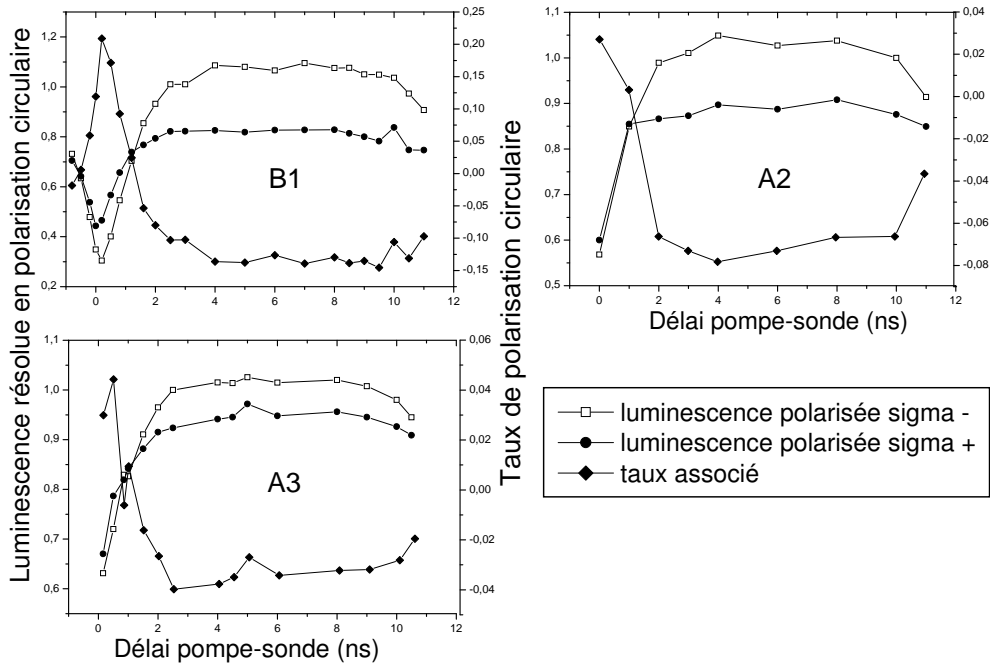


FIG. 2.12 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire et normalisée par rapport au signal de luminescence obtenu quand seule la sonde excite l'échantillon (signal de pompe coupé). Taux de polarisation correspondant.

2.3.2 Discussion

On peut désormais s'interroger au vue de l'article de I. A. Merkulov ([17]) sur la nature du temps de relaxation mesuré par cet effet mémoire. On se place sous l'hypothèse qu'il est dû aux boîtes possédant un électron.

Si l'on reprend son étude présentée au chapitre 1, et que l'on suppose donc que c'est l'interaction hyperfine qui fait relaxer le spin de l'électron, deux temps distincts de relaxation sont à considérer.

1. un temps T_{Δ} d'un ordre de grandeur de $1ns$ qui traduit la relaxation partielle de la polarisation initiale d'un ensemble de spins photoinjectés, du fait de l'orientation aléatoire du champ nucléaire d'une boîte à l'autre. La polarisation atteint alors au bout de ce temps une valeur constante égale à 33% de sa valeur initiale.

2. un second temps qui traduit la relaxation plus tardive de ces 33% de polarisation restante et qui serait due aux fluctuations temporelles du champ nucléaire. I. A. Merkulov ne donne aucune estimation de ce temps dans le cas des boîtes d'InAs.

L'effet mémoire observé supérieur à $10ns$ est donc peut être le temps de relaxation des 33% de polarisation initiale restante. Cela signifierait que le temps de relaxation d'un spin électronique est supérieur à $10ns$.

2.4 Excitation intra-boîtes

Quand on excite intra-boîtes les échantillons précédents, le taux devient positif. Les spectres de luminescence de $B1$, résolus en polarisation circulaire et en temps, sous excitation à $1.31eV$ sont représentés figure 2.13. On constate que le taux de polarisation est positif aux temps courts et qu'il décroît rapidement. Les mesures intégrées dans le temps en excitant plus bas en énergie ($E = 1.26eV$) montrent un taux de polarisation positif entre 10 et 15%. Ce taux diminue progressivement quand on se rapproche de la couche de mouillage. Pour comprendre les mécanismes intervenant intra-boîtes, la question essentielle est de savoir ce que l'on crée en matière de porteurs polarisés suivant l'énergie d'excitation. La figure 2.4 présente une modélisation de l'absorption d'une boîte d'InAs obtenue par A. Vasanelli [25].

On remarque que pour cette boîte très profonde (l'énergie du fondamental est vers $1.12eV$), le premier niveau $1Ph - 1Pe$ est parfaitement confiné contrairement aux suivants : les transitions entre états confinés et continuum de trous ou d'électrons sont excitées à partir d'une énergie de $1.25eV$. L'existence de ces niveaux mixtes (état du continuum-état discret) a des conséquences importantes en matière d'injection de porteurs polarisés. En effet, si on excite dans le niveau parfaitement confiné $1Ph-1Pe$, on va injecter sur ces niveaux un électron et un trou polarisé en spin. Les mécanismes de relaxation du trou qui faisaient perdre le spin du trou quand celui-ci était dans la couche de mouillage sont supprimés intraboîte du fait du confinement, et le trou

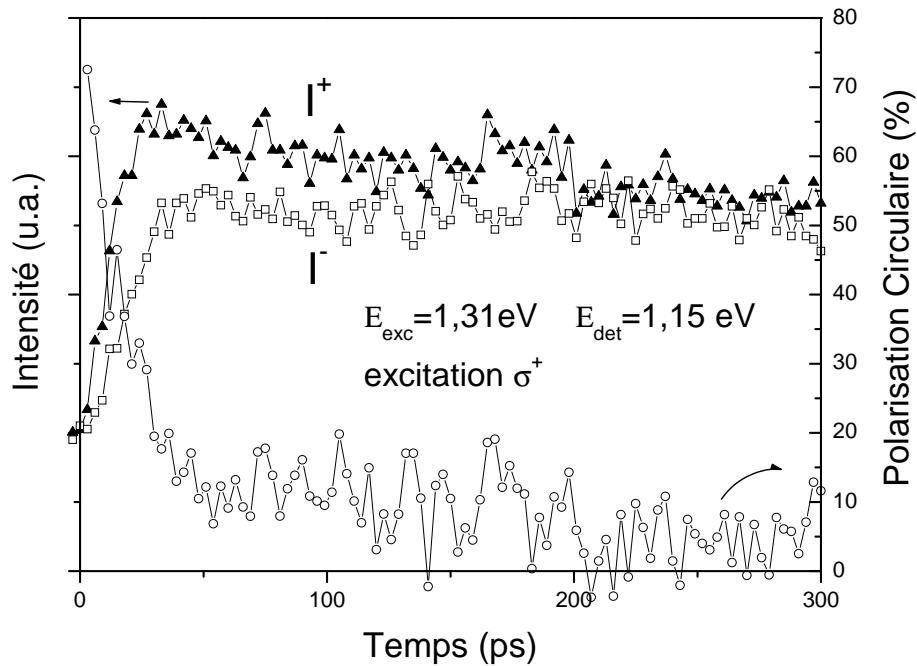


FIG. 2.13 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire et en temps de *B1* pour une excitation à 1.31eV et une détection à 1.15eV . Taux de polarisation correspondant.

conserve donc son spin lors de la thermalisation. En revanche, si on excite dans un état mixte continuum de trous-état discret électronique, il est fort possible que le trou perde sa polarisation.

Pour l'échantillon *B1*, on excite environ 100meV au dessus du fondamental dans le cas des mesures intégrées en temps. On est donc à la limite sans doute de créer des états mixtes continuum de trous-état discret d'électrons. Ceci dit, l'observation d'une dynamique du taux de polarisation radicalement différente en excitant à 1.26eV laisse suggérer qu'on n'est pas dans le cas où le trou est complètement dépolarisé; cette situation étant identique à ce qu'apporte une excitation dans la couche de mouillage. On peut expliquer l'observation de ce taux de polarisation en reprenant notre modèle simplifié présenté figure 2.15 : On ne considère que le cas d'une boîte à un électron de dopage qui absorbe une paire électron-trou polarisée en spin. Deux cas sont à

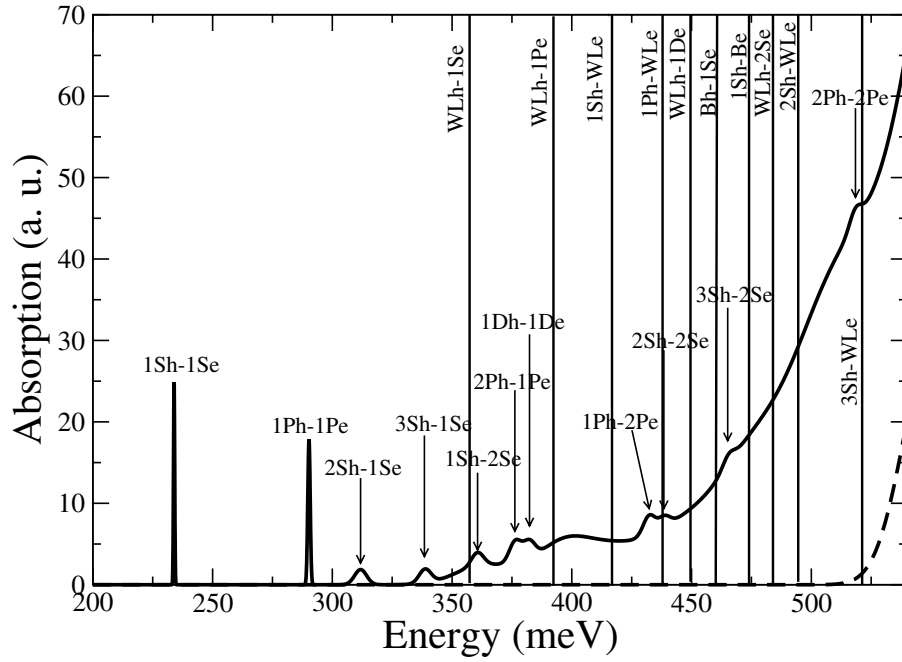


FIG. 2.14 – Modélisation de l’absorption d’une boîte quantique InAs réalisée par Angela Vasanelli. Trait plein : avec la couche de mouillage et la boîte, trait tireté : couche de mouillage seule. L’énergie maximale en abscisse correspond au début de la couche de mouillage.

considérer :

- ◆ Si la boîte se retrouve dans l’un des états $S_0^* \otimes S_v^\downarrow$ ou $T_0 \otimes S_v^\downarrow$, la relaxation est immédiate et le trou reste *up*. Ces boîtes luminescent $\sigma+$.
- ◆ Si la boîte se retrouve dans l’état $T_{-1} \otimes S_v^\downarrow$, l’interaction d’échange anisotrope intervient et renverse le spin du trou et de l’un des deux électrons. La thermalisation bloque dès lors le spin du trou dans l’état bas. Ce mécanisme peut donc être responsable de la décroissance du taux de polarisation observé. Mais là encore, le temps de décroissance du taux au cours du temps est très court et n’est pas forcément compatible avec un tel mécanisme.

Ce type de raisonnement s’applique également parfaitement aux boîtes multiples chargées pour lesquelles on observe également un taux de polarisation positif.

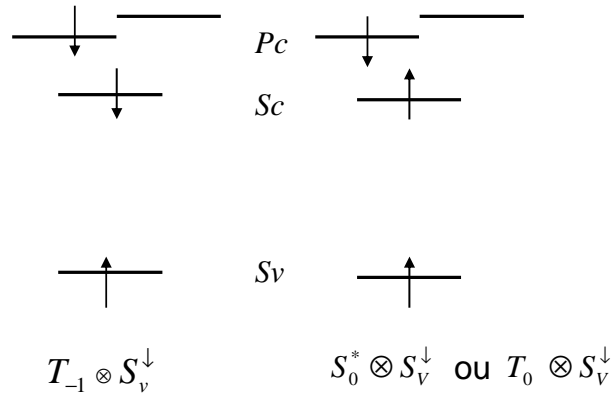


FIG. 2.15 – Représentation schématique de différents cas observés sous excitation circulaire $\sigma+$ pour une boîte possédant un électron de dopage et en supposant que le trou conserve sa polarisation.

Pour des boîtes à deux électrons, on serait en présence du cas $J = 1$ du paragraphe 2.2.3.2. Du fait de l'interaction d'échange, le taux va osciller au cours du temps et donner sur un ensemble de boîtes un taux positif décroissant avec le temps.

On peut enfin signaler que des mesures d'excitation de la photoluminescence (2.16) résolues en polarisation ont été menées sur tous les échantillons. Ces mesures montrent la diminution progressive d'un taux de polarisation positif à un taux de polarisation négatif quand on se rapproche de la couche de mouillage. L'absence de changement brutal de taux de polarisation est le signe que progressivement, du fait des transitions mixtes, on crée dans chaque boîte des trous dépolarisés quand l'énergie d'excitation augmente.

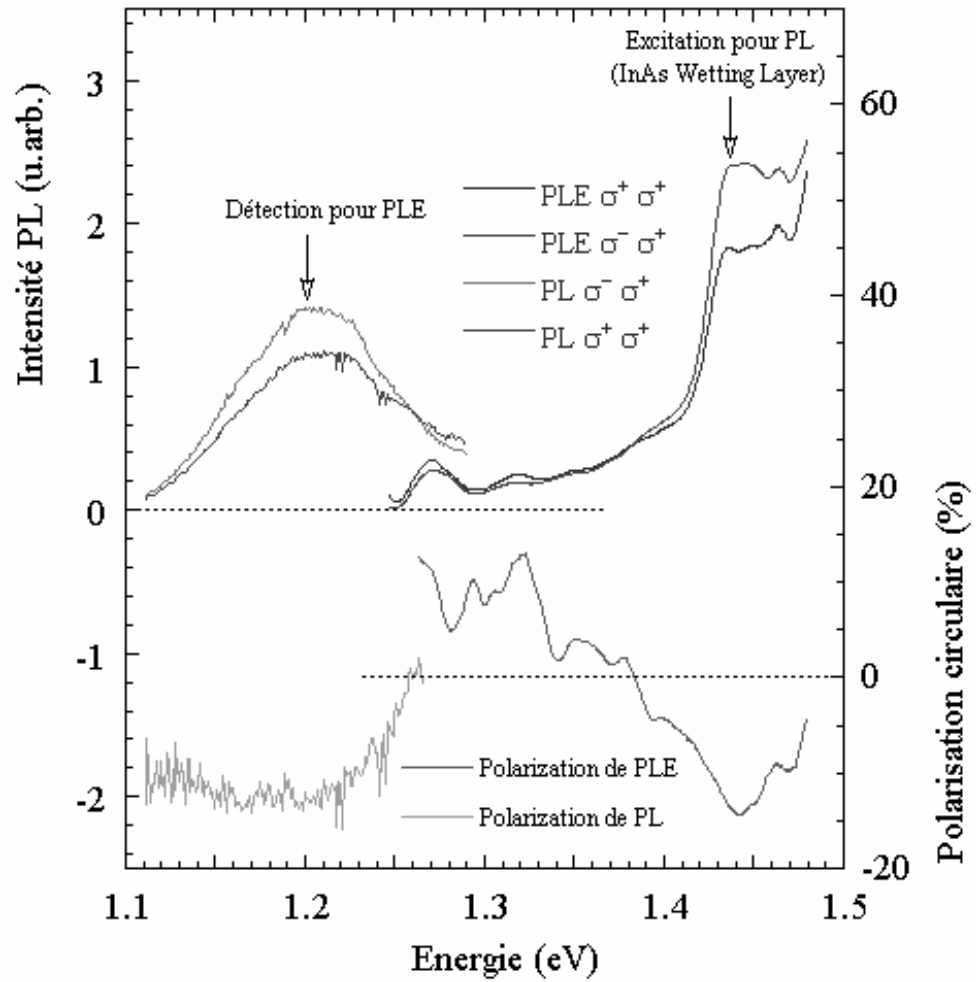


FIG. 2.16 – Excitation de la photoluminescence de l'échantillon A3

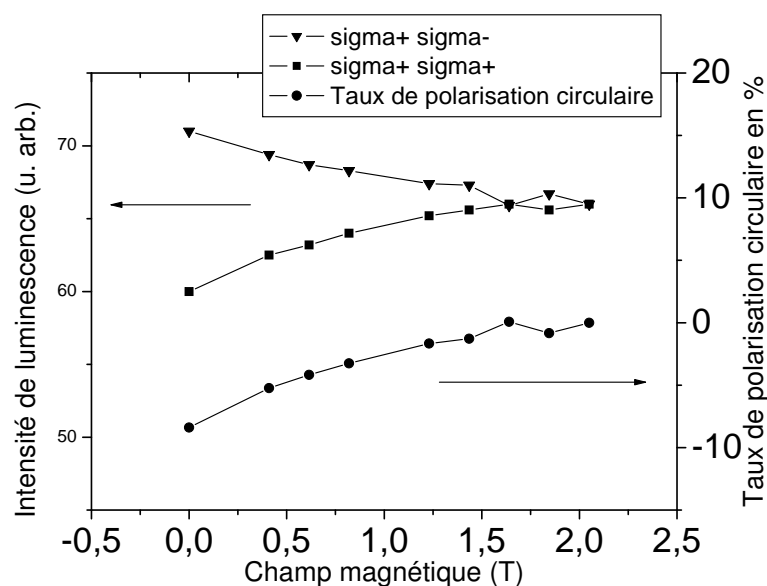


FIG. 2.17 – Influence du champ magnétique sur le maximum d'intensité de luminescence résolue en polarisation circulaire. Echantillon *B1* sous excitation dans la couche de mouillage. Evolution du taux de polarisation correspondant

2.5 Influence d'un champ magnétique longitudinal

Nous avons également observé l'influence d'un champ magnétique longitudinal sur le taux de polarisation circulaire.

On constate que le taux de polarisation circulaire chute très rapidement vers zéro. Ce phénomène s'observe pour tous les échantillons.

V. Kalevich a proposé une explication de cette observation dans le cas d'une boîte contenant deux électrons : Lorsque le champ augmente, le splitting Zeeman devient supérieur au splitting d'échange, supprimant de ce fait le mécanisme de flip flop. Le cas $J = 1$ devient alors polarisé positivement, provoquant la chute du taux négatif.

2.6 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de mettre en évidence que les boîtes contenant entre 1 et 3 électrons présentent sous excitation dans la couche de mouillage une dynamique du taux de polarisation circulaire de luminescence surprenante ; la polarisation est négative et se construit progressivement au cours de la recombinaison radiative. L'existence d'un tel comportement du taux met en évidence le rôle primordial joué par l'interaction d'échange anisotrope dans les processus de relaxation des spins des électrons et des trous confinés dans des boîtes chargées.

L'étude des boîtes quantiques à dopage chimique a également permis de montrer que le temps de relaxation d'un spin électronique est supérieur à $10ns$. Cette mesure repose cependant sur l'hypothèse qu'un certain nombre de boîtes étudiées possèdent seulement 1 électron de dopage. Une telle hypothèse ne peut cependant être pleinement justifiée et a motivé notre choix de travailler par la suite sur des boîtes uniques dont le chargement avec des électrons est parfaitement contrôlé.

Chapitre 3

Boîtes quantiques à modulation de charge

Ce chapitre présente la structure utilisée pour réaliser des mesures de polarisation de luminescence de boîtes uniques dont la charge est contrôlée. Ce type de structures a été initialement introduit par P. M. Petroff ([26]) dans les années 90. La première partie explique comment concevoir une telle structure tandis que les deux suivantes présentent ses principales propriétés. Ces dernières ont été étudiées dans le détail au cours des 15 dernières années par différents groupes cités tout au long du chapitre.

3.1 Conception d'une diode schottky

Cette première partie explique comment contrôler électriquement le dopage dans les boîtes quantiques et expose le procédé technologique utilisé pour réaliser ce contrôle.

3.1.1 Principe de la modulation de charge

L'idée consiste à placer dans une diode Schottky un plan de boîtes dont on va contrôler la position des niveaux d'énergie par rapport au niveau de Fermi d'une électrode de référence par l'application d'une tension électrique entre les deux électrodes

de la diode.

Les deux échantillons étudiés par la suite ont été réalisés par A. Lemaitre. Leur structure est donnée figure 3.1. Ils ne diffèrent que par la densité de boîtes. Ils seront notés $E1$ (densité de quelques 10^{10}cm^{-2}) et $E2$ (échantillon zone frontière). Trois points sont à noter sur la figure :

- Une couche de GaAs fortement dopée n^+ par l'introduction d'atomes de Silicium a été déposée au dessus du substrat. Cette couche va servir de réservoir d'électrons et d'électrode arrière.
- Le plan de boîtes est situé à une courte distance au dessus (25nm)
- Une barrière de potentiel d' $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ va permettre d'empêcher la circulation d'un courant d'électrons.

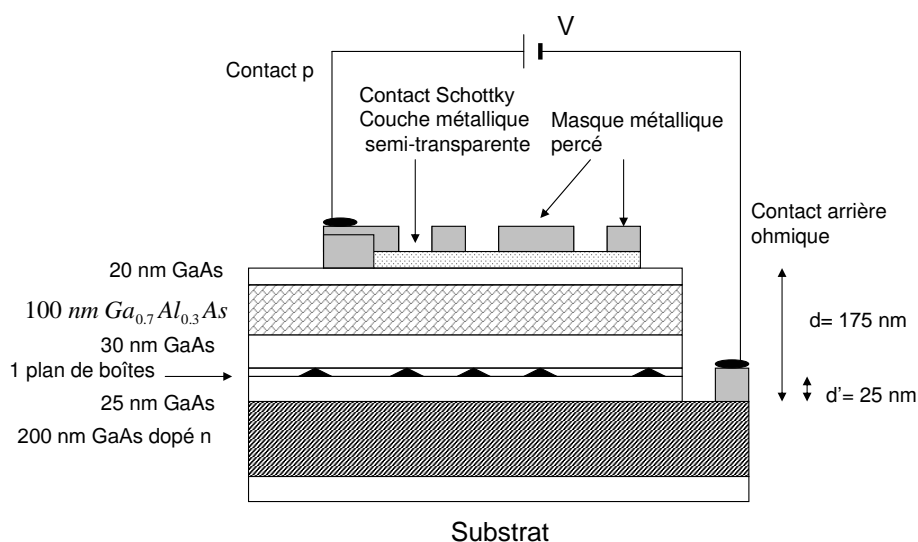


FIG. 3.1 – Structure de l'échantillon et dépôts métalliques effectués

Deux contacts métalliques sont réalisés. Le premier, entre la surface épitaxiée et une couche d'un alliage de nickel chrome, crée une barrière Schottky ; le principe d'une telle barrière peut se trouver dans la référence [27]. Dans le cas présent, il y a transfert d'électrons du métal (Ni-Cr) à l'interface avec la couche de GaAs. Ce transfert d'électrons provoque l'apparition d'une barrière de potentiel d'environ 0.8eV

et l'établissement d'un champ interne dirigé du semi-conducteur vers le métal, afin d'égaliser les potentiels chimiques des deux zones.

Le second contact, le contact arrière, est de nature ohmique. Ce type de contact, dont la réalisation est décrite dans la section suivante, laisse passer le courant avec une résistance ohmique très faible entre le métal et la couche de GaAs dopée.

Du fait de la forte densité de dopant (quelques 10^{18}cm^{-3}), la zone de déplétion qui apparaît dans la région dopée n est très étroite ($< 5 \text{nm}$). On considèrera donc que le champ électrique interne est constant tout le long de la structure. L'allure du profil de bande de conduction résultant est donnée figure 3.2.

Si on applique une tension V entre le contact Schottky et l'électrode GaAs $n+$, on diminue ou augmente le champ ressenti par la structure, suivant le signe donné à V (Voir figure 3.2). Si on considère ce champ constant, appliquer par exemple une tension V positive revient à abaisser l'énergie de la bande de conduction au niveau des boîtes (situées à la distance d' de GaAs $n+$) d'une valeur $-eVd'/d$. C'est ce phénomène de bras de levier qui va nous permettre de contrôler le nombre d'électrons injectés.

On prendra comme référence des énergies par la suite le bas de la bande de conduction de la boîte.

Il apparaît que pour une certaine valeur de la tension appliquée, le niveau quantique S d'une boîte se trouve à la même énergie que le potentiel chimique μ_E de GaAs $n+$, permettant ainsi à un électron de la zone dopée de passer par effet tunnel dans la boîte. La boîte contenant un électron se retrouve alors en équilibre avec l'électrode GaAs $n+$. Si on augmente à nouveau la tension, un second puis un troisième (etc) électron vont tunneller dans la boîte.

Si on ajoute optiquement une paire électron trou dans la boîte on va donc pouvoir observer en fonction de la tension appliquée la luminescence des raies excitoniques chargées successives : X_0 , X^{-1} , X^{2-} etc. Une description plus précise de ce mécanisme est donnée au paragraphe 3.4.1 et peut être lue indépendamment de ce qui suit.

La dispersion en taille des boîtes provoquant une dispersion de l'énergie des états S de l'ensemble de l'échantillon, le remplissage de chaque niveau va s'effectuer sur une gamme étendue de tension.

Il faut noter de plus que ce procédé permet de mettre deux électrons sur l'état S l'un à la suite de l'autre. L'énergie des deux électrons diffère en effet de celle d'un électron du fait du blocage de Coulomb, ($\mu(2) = \mu(1) + J_{ee}^{ss}$ voir partie 3.4.1). Par ailleurs, comme l'a démontré P. Lelong ([9]), l'apparition d'un plan de charges dans la structure, dû au remplissage des boîtes avec un électron, modifie la structure de bandes et ainsi l'énergie nécessaire au remplissage avec deux électrons. Cet effet dépend cependant de la densité de boîtes.

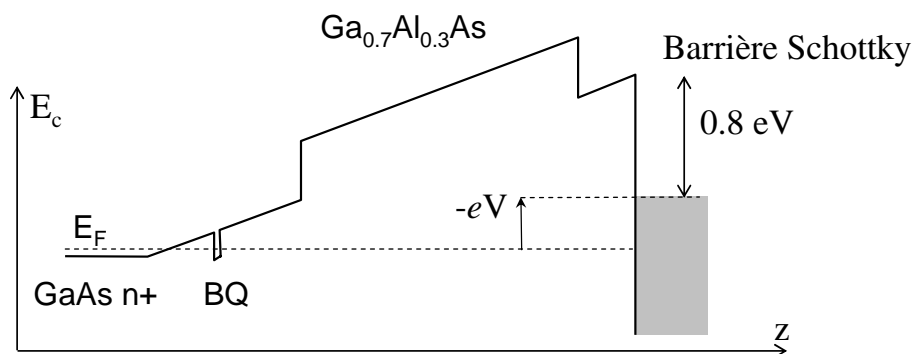


FIG. 3.2 – Profil de l'énergie de la bande de conduction de la structure

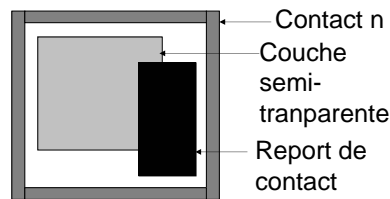


FIG. 3.3 – Dépôts métalliques réalisés sur la surface épitaxiée

3.1.2 Le procédé technologique

Cette section a pour but de garder une trace écrite du procédé technologique utilisé, qui s'est avéré reproductible et a apporté de bons résultats. Il va de soi que ce procédé tient compte des conditions expérimentales de la salle blanche du LPN et n'est donc pas forcément le plus adapté ailleurs. Il est aussi le premier procédé qui s'est avéré bon malgré sa non optimisation.

3.1.2.1 Les différentes étapes

Les diodes Schottky réalisées sont volontairement de petite taille (environ $300\mu m$ de côté) afin de limiter le nombre de défauts qui augmentent le courant d'obscurité. Les différents dépôts métalliques utilisent la technique du lift off : celle-ci comporte trois étapes :

1. La première consiste à recouvrir de résine la surface entière de l'échantillon sauf sur les zones sur lesquelles on souhaite déposer le métal. Ceci se fait par lithographie optique.
2. La seconde est le dépôt métallique qui s'effectue sur la totalité de la surface de l'échantillon
3. La dernière consiste à dissoudre la résine présente sous le dépôt métallique en trempant l'échantillon dans l'acétone. Au final, seul le métal déposé sur les zones n'ayant pas été recouvertes de résine adhère à l'échantillon.

Les différentes étapes de réalisation de la diode sont décrites ci-dessous :

1. Le premier contact, (voir figure 3.3) le contact n doit être de nature ohmique ([27]). Le dépôt qui s'effectue sur la surface épitaxiée, est du Ni100Å, Ge600Å, Au1200Å, Ni200Å, Au2000Å. Il est suivi d'un recuit pendant 10s à 380 degrés qui permet la diffusion du métal jusqu'à la couche dopée n^+ , et ceci malgré que cette dernière soit à 175nm de la surface épitaxiée. Ceci permet un contact électrique de résistance de contact faible entre ce dépôt métallique et la couche de GaAs dopée n^+ .
2. Le second contact, le contact Schottky est réalisé en deux étapes sur la surface épitaxiée non dopée :
 - La première étape consiste à déposer, toujours par la technique du lift off une fine couche métallique (par exemple 50Å ou 70Å d'un alliage de $Ni_{50\%}/Cr_{50\%}$, ou 50Å/100Å de Ti/Au). Cette fine couche permet de réaliser la barrière Schottky tout en étant semi-transparente pour les expériences d'optique . Elle est en revanche trop fine pour permettre de réaliser le contact électrique avec l'extérieur (risque d'arrachage de la couche). Un report de contact est nécessaire.
 - C'est le rôle de cette seconde couche, composée de 300Å/2000Å de Ti/Au. Cette couche est déposée à cheval sur la deuxième couche, pour réaliser le contact électrique, et sur la surface épitaxiée de GaAs. C'est sur cette dernière zone du dépôt qu'est réalisée la micro-soudure, l'opération qui consiste à souder un fil microscopique entre cette couche et un support macroscopique.
 - Un dernier dépôt métallique peut éventuellement être réalisé si on souhaite limiter le nombre de boîtes quantiques accessibles optiquement, afin de travailler sur boîtes uniques. On réalise alors un dernier dépôt métallique de 300Å/2000Å de Ti/Au sur l'ensemble du dépôt semi-transparent, à l'exception de quelques zones de 1 à 2µm de diamètre. La façon dont sont réalisés ces trous de quelques microns dans ce masque optique sera présentée dans le

paragraphe suivant.

3.1.2.2 Notes

Je rentre un peu plus dans les détails de technologie dans cette partie à l'intention des lecteurs qui voudraient reproduire ce procédé. Il ne faut considérer ce qui suit que comme des indications de problèmes que l'on peut rencontrer, et ne rien considérer comme définitif. Ces problèmes sont en effet souvent intimement liés à des paramètres difficilement maîtrisables ainsi qu'aux conditions opératoires .

- *Problèmes liés à la micro-soudure* L'opération qui consiste à réaliser la micro-soudure sur la succession des deux couches : Ti/Au 50Å/100Å puis 300Å/2000Å s'est avérée peu reproductible. La micro-soudure arrachait parfois la couche métallique, à cause d'une mauvaise adhérence de celle-ci. On peut incriminer la première épaisseur de Ti, 50Å, qui est peut-être insuffisante pour permettre une bonne adhérence avec la surface. Le problème a été contourné en réalisant le dépôt métallique à cheval sur la couche semi-transparente et le GaAs. La micro-soudure sur une couche de métal de 300Å/2000Å directement posée sur le GaAs ne pose en revanche aucun problème car la présence de 300Å de titane directement en contact avec le semi-conducteur permet de faire adhérer le dépôt localement et donc de souder facilement.
- *A propos de la taille des diodes* : Un procédé a été réalisé avec une taille de diodes de 2 mm de diamètre en utilisant pour les dépôts un masque en cuivre présentant des ouvertures de 2mm de diamètre. Les caractéristiques électriques et optiques de ces diodes se sont avérées tout aussi satisfaisantes que celles des petites diodes. Ces diodes se sont avérées en outre bien plus résitantes dans le temps, et la micro soudure sur la succession de couches : couche semi-transparente-300Å/2000Å de Ti/Au a été possible! Il est probable (cela reste cependant à confirmer) que plus la surface des dépôts métalliques est grande et moins une mauvaise adhérence locale n'est importante pour la réalisation

de la microsoudure. Ce procédé a par ailleurs révélé que la taille des diodes n'est certainement pas critique pour obtenir les caractéristiques optiques et électriques désirées.

- *Choix du matériau de la couche semi-transparente* : Le NiCr a une "bonne réputation" en matière d'adhérence avec la surface. La micro-soudure réalisée sur la succession de couches NiCr 70Å, Ti/Au 300Å/2000Å a été possible sur les deux échantillons testés. Là encore, cela ne veut pas dire que ce soit toujours possible, il faudrait faire des tests supplémentaires.
- *Choix de la structure* : Il a été impossible de trouver un procédé reproductible et des caractéristiques électriques bonnes sur un premier échantillon possédant comme barrière une hétérostructure d'AlAs/GaAs surmontée d'une épaisseur de GaAs de seulement 50Å. Cette dernière couche étant attaquée de quelques dizaines d'Angström pendant le procédé de desoxydation du GaAs (utilisant environ 20% de HCl dilué dans l'eau pendant 1 minute), la surface d'AlAs se retrouvait en contact avec l'air et donc oxydée, ce qui était probablement à l'origine des problèmes d'adhérence que l'on rencontrait par la suite. Il est tout à fait possible de travailler avec de telles structures si on déporte comme présenté figure 3.1 la zone sur laquelle on réalise la micro-soudure et si on limite le "grignotage" de la couche superficielle (en limitant le nombre de desoxydations).
- *Réalisation du masque optique* : La méthode classique pour réaliser un dépôt métallique sur toute une surface sauf en quelques points d'1 à 2µm de diamètre utilise la lithographie optique. Une méthode plus rapide consiste à utiliser des billes de diamètre au choix de 1 ou 2µm que l'on dépose sur la surface avant le dépôt métallique. Ce dernier va se faire partout sauf à l'emplacement des billes, que l'on ôte après le "lift off" en trempant l'échantillon dans du toluène pendant quelques dizaines de minutes. Cette étape est réalisée après l'étape du contact n et le dépôt semi-transparent. La façon dont on dépose les billes est cependant délicate. Ces billes sont vendues en solution dans l'eau. Si on trempe l'échantillon dans une solution d'eau et de billes, le dépôt de billes

est non reproductible et surtout complètement inhomogène, l'eau n'adhérant pas à la surface de l'échantillon et emprisonnant l'essentiel des billes dans la goutte qu'elle forme. Pour contourner ce problème, l'idée a été d'utiliser une solution de billes diluées dans de l'isopropanol qui mouille bien mieux la surface. Cependant, ce dépôt de billes doit s'effectuer après le dépôt du masque de résine réalisé en lithographie optique afin de protéger le contact n de la métallisation qui va suivre. Or ce masque ne résiste pas à l'isopropanol! Cependant, il s'est avéré que si on recuit l'échantillon avec son masque de résine pendant environ 6 heures sur une plaque chauffante à 120 degrés, la résine durcit suffisamment pour résister aux quelques secondes pendant lesquelles l'échantillon est trempé dans la solution d'isopropanol, sans pour autant rendre le lift off, après la métallisation, délicat.

3.1.3 Caractéristiques I(V) et C(V)

3.1.3.1 Caractéristique I(V)

La caractéristique I(V) à température ambiante, des diodes obtenues par ce procédé est donnée figure 3.4.

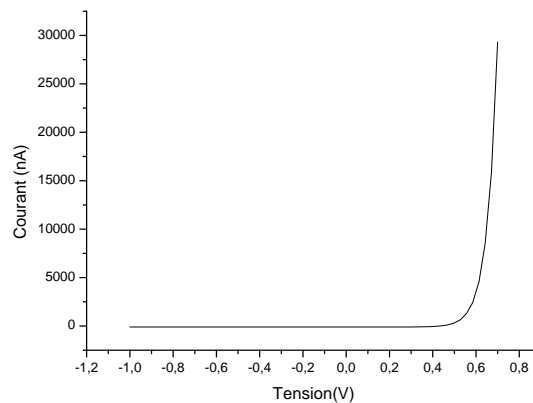


FIG. 3.4 – Caractéristique courant tension à 300K des diodes Schottky conçues

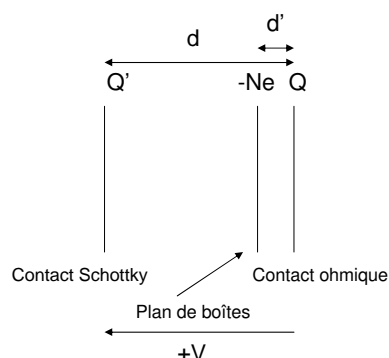


FIG. 3.5 – Modélisation de la structure par trois plans chargés

On peut noter sur cette caractéristique la valeur très faible du courant de fuite, observé pour V négatif (tout au plus quelques centaines de picoampères) et la tension pour laquelle on redresse la structure de bandes, environ $0.6V$. On recherche en pratique un courant d'électrons le plus faible possible pour que le remplissage des boîtes se fasse bien par effet tunnel et non par capture d'électrons du courant de fuite.

3.1.3.2 Caractéristique $C(V)$

La mesure de la capacité de la structure en fonction de la tension appliquée permet de déterminer les tensions pour lesquelles on remplit les niveaux successifs des boîtes (Voir thèse de P. Lelong [9]).

Pour comprendre le principe de cette mesure, commençons par comprendre de quoi va dépendre la capacité de la structure conçue. Je reprends ici sommairement la modélisation faite par P. Lelong dans sa thèse. Comme le montre la figure 3.2, on schématise la structure comme étant constituée de deux armatures métalliques (métaux supposés parfaits) portant une charge respective Q et Q' , séparées par un diélectrique (ϵ_r) et par un plan de charges (les boîtes) $-Ne$ (Voir figure 3.5). N est le nombre total d'électrons présents dans le plan de boîtes. Si on applique une différence de potentiel V entre l'électrode de gauche et celle de droite, en notant C , la capacité géométrique du condensateur formé des deux plans extérieurs quand les boîtes sont

vides ($C = \epsilon_0 \epsilon_r S/d$) on obtient par application du théorème de Gauss :

$$Q = -CV + Ne\left(1 - \frac{1}{L}\right)$$

Tandis que la condition de neutralité de la structure donne :

$$Ne = Q' + Q$$

où $L = d/d' = 6$ dans nos structures.

Si on suppose que le sous-système formé par le plan de boîtes et l'électrode de droite est à l'équilibre thermodynamique, c'est à dire que les potentiels chimiques des deux objets sont égaux, on peut assimiler ces deux plans à une seule armature de charge $-Q'$ et définir la capacité C_{exp} du condensateur ainsi formé de façon classique par :

$$C_{exp} = \frac{\partial Q'}{\partial V} = C + \frac{e}{L} \frac{\partial N}{\partial V} \quad (3.1)$$

On peut donc voir la capacité comme la somme d'une capacité géométrique et d'un terme qui traduit le chargement des boîtes. P. Lelong modélise à partir de là la dépendance du nombre de porteurs dans les boîtes en fonction de la tension appliquée et permet d'interpréter l'allure des courbes obtenues. On peut également se référer aux articles [26] et [28].

La figure 3.6 montre la capacité mesurée à 10K d'une diode d'environ $300\mu m$ de côté, contenant un plan dense de boîtes (quelques $10^{10} cm^{-2}$). Le principe de la mesure est le suivant : On applique à la diode en plus de la tension V continue une tension sinusoïdale de fréquence quelques dizaines de kilohertz et d'amplitude environ $10mV$. On mesure en utilisant une détection synchrone le courant en phase et en opposition de phase qui traverse la structure. Ceci permet de déduire la capacité de la diode en fonction de la tension V appliquée.

On peut remarquer sur la figure 3.6 trois marches d'escalier successives. Elles correspondent aux phases de chargement par des électrons de trois niveaux successifs de l'échantillon. On observe des marches d'escalier et non des pics de capacité du

fait de l'existence en plus de la capacité géométrique d'une capacité relative au gaz d'électrons $2D$ qui se forme au niveau de la couche de mouillage (Voir [28]). Cette dernière est responsable de l'augmentation avec la tension appliquée de la capacité totale et de la seconde marche observée.

Les deux mesures présentées figure 3.6 montrent que la première marche est due aux boîtes elles-même (elle disparaît quand la densité de boîtes chute, voir figure 3.7). Les mesures sur boîtes uniques viendront confirmer à la section suivante qu'effectivement, le chargement des boîtes avec un puis deux électrons s'effectue entre -100 et $500mV$. La seconde marche correspond au chargement de la couche de mouillage et d'éventuels états excités, l'ensemble étant entièrement chargé vers $E1 = 900meV$. L'écart en tension entre les deux marches peut s'interpréter en supposant que les niveaux d'énergie varient linéairement avec la tension appliquée (ce qui est faux d'un point de vue rigoureux dès qu'on charge les boîtes, la bande de conduction se courbant au niveau du plan de boîtes). Cependant, dans ce cas, la couche de mouillage étant située à $1.42eV$, la montée observée à partir de $E2 = -200mV$ correspondrait aux boîtes profondes de l'échantillon qui seraient situées à $(E1 - E2) * d'/d = 157meV$ en dessous de l'énergie de la couche de mouillage, soit vers $1.263eV$. Ceci est cohérent avec les spectres de photoluminescence obtenus, le maximum du signal de luminescence se trouvant vers $1.31eV$. La dernière marche correspondrait alors au remplissage des couches de *GaAs*.

Cette interprétation des deuxième et troisième marches d'escalier repose cependant sur peu de certitudes. Les mesures de photocourant et de photoluminescence vont nous permettre de faire mieux connaissance avec la structure.

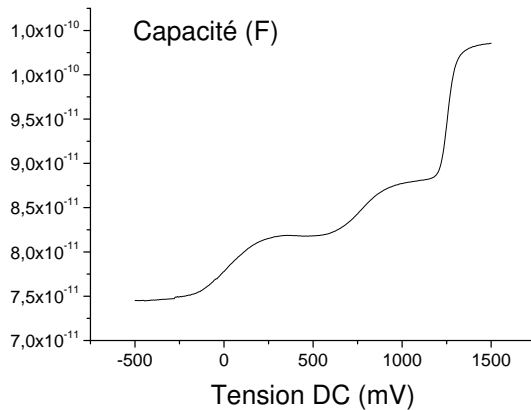


FIG. 3.6 – Caractéristique capacité tension d’une diode de $300\mu\text{m}$ de côté et possédant une densité de boîtes de quelques 10^{10}cm^{-2}

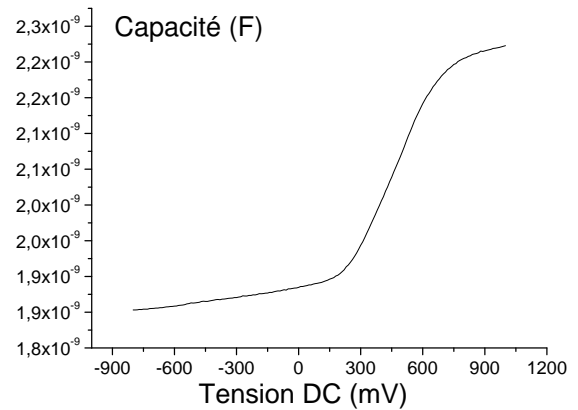


FIG. 3.7 – Caractéristique capacité tension d’une diode de 1mm^2 de surface et possédant une densité de boîtes de 2.10^9cm^{-2}

3.2 Importance de l’effet tunnel sur la durée de vie des porteurs

Les mesures de photocourant et de photoluminescence réalisées sur l’échantillon *E1* vont nous permettre d’introduire un phénomène qui va constamment intervenir par la suite lors de nos études sur boîtes uniques. Il s’agit de l’effet tunnel qui intervient entre le plan de boîtes et la zone dopée n.

3.2.1 Echappement des porteurs par effet tunnel

L’effet tunnel pour ce type de structures a été étudié par de nombreuses équipes à l’aide de mesures de capacité ([29], [30], [31]) et en comparant les signaux de photoluminescence et de photocourant sur ensemble de boîtes ([32]) et boîtes uniques ([33]).

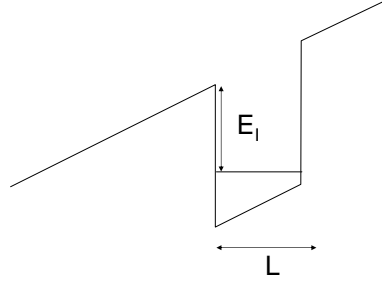


FIG. 3.8 – Modélisation de la boîte pour le calcul de l'effet tunnel

Le taux d'échappement par effet tunnel a été modélisé lors de ces études. Il s'écrit pour des porteurs, électrons ou trous, confinés à une énergie d'ionisation $E_I^{e,h}$ de la couche de mouillage dans un potentiel de confinement de longueur caractéristique L :

$$1/\tau = \frac{\hbar\pi}{2m_{e,h}^* L^2} \exp\left[\frac{-4}{3\hbar e F} \sqrt{2m_{e,h}^* E_I^3}\right] \quad (3.2)$$

Avec F le champ électrique de la structure et $m_{e,h}^*$ la masse effective de l'électron ou du trou dans la barrière de GaAs, supposé non contraint (Voir figure 3.8).

Le choix des paramètres est très critique pour évaluer ce temps tunnel, et en particulier la valeur du champ électrique et de l'énergie d'ionisation. Des écarts relatifs faibles de ces paramètres conduisent à de grandes variations de $1/\tau_{e,h}$. Effectuons cependant une application numérique en utilisant les valeurs des paramètres utilisées par R. Oulton [33] pour des boîtes d'énergie du niveau fondamental similaire émettant à $1.25eV$: on obtient avec les paramètres suivants : $L = 1.4nm$, tension appliquée nulle, $E_I^e = 117meV$, ($E_I^e/E_I^h = 2.2$ et $E_{WL} = 1.42eV$), $F = 0.75/d = 43kVcm^{-1}$, $m_e^* = 0.067m_e$: $1/\tau = 0.09ns^{-1}$.

Par ailleurs, des mesures réalisées par M. C. Bödefeld [34] semblent indiquer que le taux d'échappement par effet tunnel du trou est beaucoup plus petit que celui de l'électron, $1/\tau_h \ll 1/\tau_e$, permettant de comparer le temps d'échappement par effet tunnel de l'exciton, $1/(1/\tau_h + 1/\tau_e) \approx \tau_e$ au temps de recombinaison radiative $\approx 1ns$. Dans le cas de l'application numérique précédente, cela indiquerait qu'à $0V$, l'exciton

est stable et se recombine radiativement.

En pratique, il n'est malheureusement pas possible d'estimer pour tous les cas de figure le temps tunnel, le choix des paramètres étant trop critique.

3.2.2 Compétition entre photoluminescence et photocourant

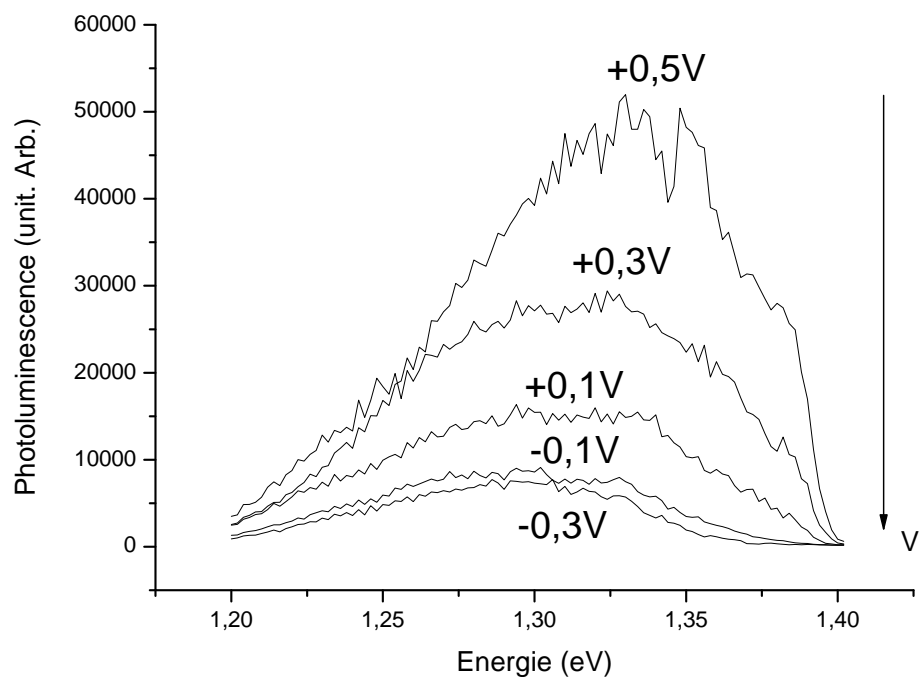


FIG. 3.9 – Photoluminescence de $E1$ pour différentes tensions appliquées et en excitant à $1,42\text{ eV}$ pour une puissance de 10^5 W cm^{-2}

Les figures 3.10 et 3.9 montrent les mesures de photoluminescence et de photocourant réalisées sur $E1$.

Le principe de la mesure du photocourant est de mesurer le courant qui circule dans la diode pour une tension fixe en fonction de l'énergie d'excitation du laser. Lorsque l'échantillon absorbe, les paires électrons-trous photocréés peuvent ou bien

se recombiner optiquement, ou bien participer au courant électrique (en négligeant d'autres processus de recombinaison non-radiatifs). Les mesures du photocourant et de la photoluminescence sont donc anti-corrélées. La mesure du photocourant nous montre que même en excitant intraboîte à des énergies très basses comme $1.2eV$, un certain nombre d'électrons et de trous photocréés arrive à s'échapper des boîtes pour participer au photocourant. Deux mécanismes peuvent permettre aux porteurs de s'échapper des boîtes : l'activation thermique et l'effet tunnel décrit précédemment. A $10K$, comme l'a démontré Fry et al. [35], l'énergie d'activation est insuffisante pour permettre aux porteurs de s'échapper. L'effet tunnel, en revanche, intervient et dépend de la largeur effective (voir formule 3.2) de la barrière de potentiel séparant le plan de boîtes de la zone dopée n. Celle-ci dépend de la tension appliquée. Plus le champ électrique est fort et plus cette largeur diminue favorisant ainsi l'échappement des porteurs au détriment de leur recombinaison radiative.

On comprend dès lors l'évolution des courbes de photoluminescence et de photocourant en fonction de la tension appliquée : pour une énergie donnée, le photocourant augmente tandis que la photoluminescence chute quand la tension diminue. Par ailleurs, le maximum de photoluminescence se déplace vers le rouge quand la tension diminue, la barrière tunnel étant plus large pour les porteurs situés dans les boîtes les plus profondes.

Notons que les mesures de photoluminescence n'ont pas permis, même en excitant très fortement, de mettre en évidence les états excités P des boîtes, qui habituellement se manifestent par des transitions (P-P) entre 50 et $60meV$ au dessus du fondamental de la photoluminescence. Deux raisons sont susceptibles d'expliquer cela : le maximum de luminescence étant vers $1.3eV$, l'état P de la majeure partie des boîtes est ou bien dans la couche de mouillage, ou suffisamment peu confiné pour permettre aux porteurs présents sur cet état de s'échapper par effet tunnel. Les boîtes les plus profondes ont en revanche certainement un état P confiné, qui doit contribuer à l'élargissement inhomogène de la raie vers les hautes énergies quand on augmente la tension (figure

3.9).

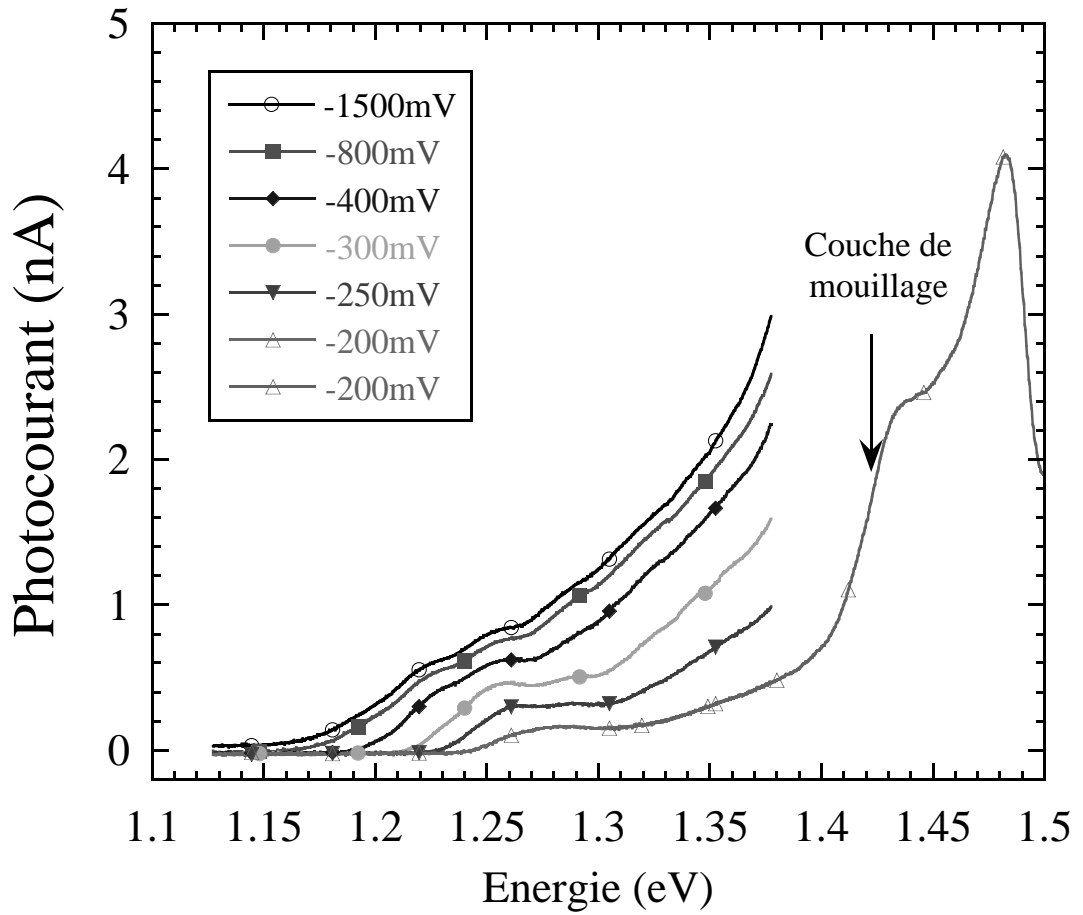


FIG. 3.10 – Photocourant excité par une lampe blanche filtrée par un monochromateur ($10\text{mW}/\text{cm}^{-2}$), pour différentes tensions appliquées.

3.3 Photoluminescence de boîtes uniques

3.3.1 Aspects expérimentaux

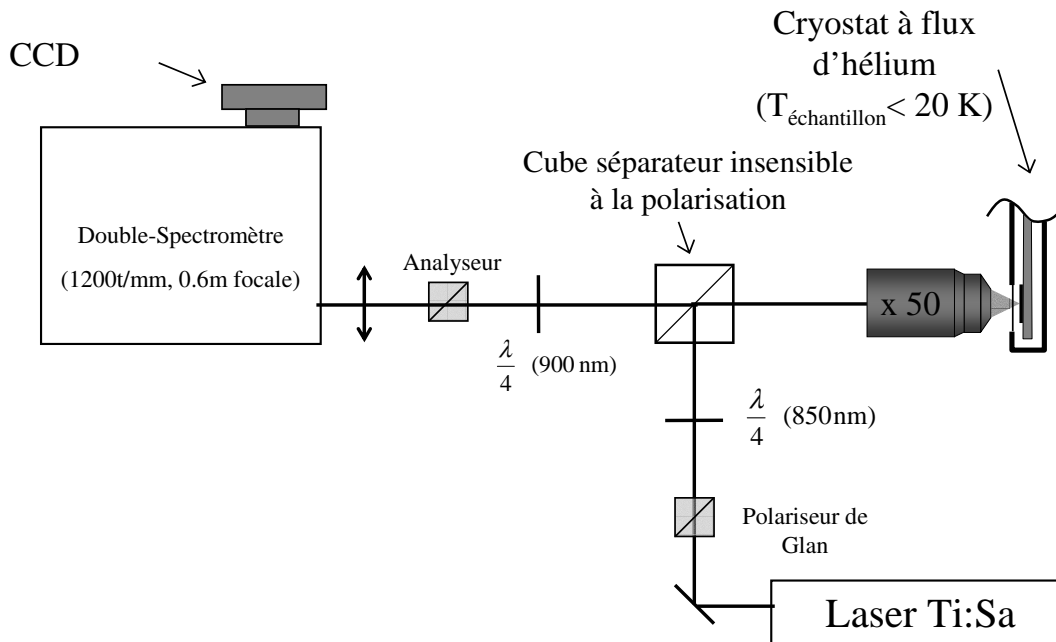


FIG. 3.11 – Montage expérimental de microphotoluminescence

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser des expériences de microphotoluminescence est présenté figure 3.11. Un laser titane saphir (plage couverte : 840nm - 980nm) polarisé circulairement, est focalisé à la surface de l'échantillon grâce à un objectif de microscope *50 de grande frontale. Ce même objectif collecte la luminescence et la renvoie dans un double spectromètre couplé à une caméra CCD refroidie à l'azote liquide. Les mesures de la polarisation sont effectuées grâce à un ensemble de polariseurs et de lames quart d'onde. Le cube séparateur permettant de travailler en réflexion est traité pour être insensible à la polarisation.

Ce montage permet d'obtenir une résolution spectrale de $40\mu\text{eV}$ et d'acquérir en une

acquisition un spectre d'environ $10meV$ de large.

La puissance d'excitation du laser sera choisie en tenant compte de l'énergie d'excitation : l'absorption des boîtes étant beaucoup plus faible que celle de la couche de mouillage, la puissance d'excitation intraboîte sera plus élevée. Les puissances utilisées sont typiquement 10^4Wcm^{-2} en excitant dans la couche de mouillage (laser continu) et dix fois plus intra-boîte.

L'échantillon, qui est monté sur une plaque d'alumine pour le report des contacts, est fixé sur le doigt froid d'un cryostat à flux d'hélium. La température de l'échantillon se situe probablement entre 10 et $20K$.

Les vibrations mécaniques sont partiellement supprimées grâce au faux plancher d'une part et à la fixation rigide de la canne de transfert à la table.

3.3.1.2 Ecrantage du champ par accumulation d'un gaz de trous

Nous avons constaté qu'augmenter la puissance d'excitation peut décaler les tensions d'apparition des différentes raies d'excitons chargés d'une boîte unique (montrées plus loin) vers des valeurs plus faibles. Ceci est provoqué par l'existence d'un puits de potentiel pour les trous situé entre le plan de boîtes et la barrière d'AlGaAs. (Voir figure 3.12).

Lorsqu'on excite dans la couche de mouillage, des transitions croisées peuvent se produire entre les niveaux de ce puits et les niveaux électroniques de la couche de mouillage ; ou bien des trous photocréés dans la couche de mouillage peuvent passer par effet tunnel dans ce puits. Ce dernier peut donc se remplir et ceci d'autant plus efficacement que l'on excite haut en énergie et fortement. Ce remplissage provoque localement une diminution du champ électrique et ainsi un abaissement de la tension nécessaire pour remplir le premier niveau électronique de la boîte. On observe ainsi un décalage en tension d'environ $200mV$ pour la tension d'apparition de X^- pour une boîte luminescant à $1.32eV$ et excitée à $1.475eV$, lorsque la puissance passe de

$10^4 W cm^{-2}$ à $10^5 W cm^{-2}$. Ce phénomène a été étudié par J. M. Smith ([36]).

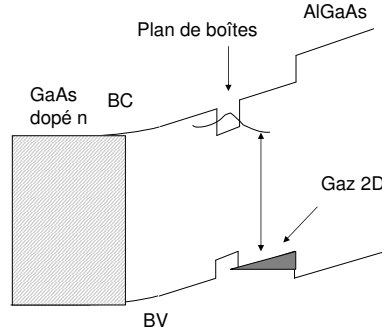


FIG. 3.12 – Gaz 2D de trous

3.3.2 Observation du trion

La figure 3.13 donne les spectres obtenus pour une boîte de l'échantillon zone frontière $E2$, qui émet vers $1.317eV$ après excitation dans la couche de mouillage. On constate que suivant la tension appliquée, des raies apparaissent ou disparaissent. Pour $V < -200mV$ on n'observe aucun signal, l'effet tunnel devant être trop important pour nous permettre de voir quoique ce soit avec notre sensibilité de mesure. La première raie qui apparaît entre $-200mV$ et $-100mV$ disparaît à $300mV$ au profit d'une seconde raie située environ $7meV$ en dessous. L'intensité de cette seconde raie croît jusqu'à $V = 500mV$.

Observer l'apparition d'une première raie puis sa disparition au profit d'une seconde située entre 5 et $7meV$ plus bas en énergie est caractéristique de l'existence d'un couple exciton trion. (Se référer aux articles [21], [37] et [38] pour l'attribution des raies). Entre $-200mV$ et $+200mV$, l'exciton luminesce seul. A partir de $+200mV$, le niveau fondamental de la boîte est en équilibre avec le niveau de Fermi et il se charge par effet tunnel d'un premier électron, permettant ainsi la luminescence du trion (composé de deux électrons et d'un trou).

L'écart énergétique entre les deux photons émis par X et X^- est donné par ([39]) :

$$\epsilon_{X^-} - \epsilon_X = J_{ee}^{ss} - J_{et}^{ss}$$

Avec J_{et}^{ss} l'interaction de Coulomb attractive entre le trou et l'électron et J_{ee}^{ss} l'interaction de Coulomb répulsive entre les deux électrons. Cet écart est négatif expérimentalement, soit $J_{eh}^{ss} > J_{ee}^{ss}$. Ceci est dû à une plus forte localisation de la fonction d'onde du trou sur le niveau S comparée à celle de l'électron. On peut noter par ailleurs que des mesures de photoluminescence résolues en polarisation linéaire montrent qu'il n'y a pas, comme attendu, de levée de dégénérescence pour le trion, contrairement à l'exciton. Ceci constitue une aide précieuse pour la reconnaissance du trion parmi un ensemble de raies dans un spectre.

Par ailleurs, on observe sur la figure 3.13 que le trion et l'exciton ne coexistent que sur une faible plage en tension. La plage de tensions sur laquelle l'équilibre électrostatique passe de 0 à 1 électron est donc faible. L'étude de boîtes plus profondes luminescant vers $1.25eV$ sous excitation dans la couche de mouillage ne montre pas un tel phénomène. On peut observer l'exciton et le trion sur une plage de $200mV$ de large. Pour ces boîtes, la largeur de barrière est suffisamment épaisse pour permettre la recombinaison radiative d'un exciton photocréé avant la capture par effet tunnel d'un électron, quand bien même l'état stable de la boîte serait un trion.

La figure 3.13 montre que la raie du trion croît en intensité quand la tension augmente. Ceci est probablement à nouveau la signature d'une augmentation de la durée de vie des porteurs dans les boîtes quand l'effet tunnel est moins efficace.

On peut également observer sur ces courbes l'évolution avec la tension de la largeur de raie du trion. Quand le trion apparaît cette largeur est de $170\mu eV$; elle chute ensuite et vaut entre 80 et $120\mu eV$ pour $V < 500mV$. Au delà de cette tension, la raie s'élargit considérablement. Nous étudierons ce comportement dans la prochaine section. Pour $V = 250mV$, l'observation d'une largeur de raie plus importante au moment de l'existence conjointe de l'exciton et du trion est une illustration du temps de vie court de l'électron dans la boîte. La tension est alors insuffisante pour le stabiliser.

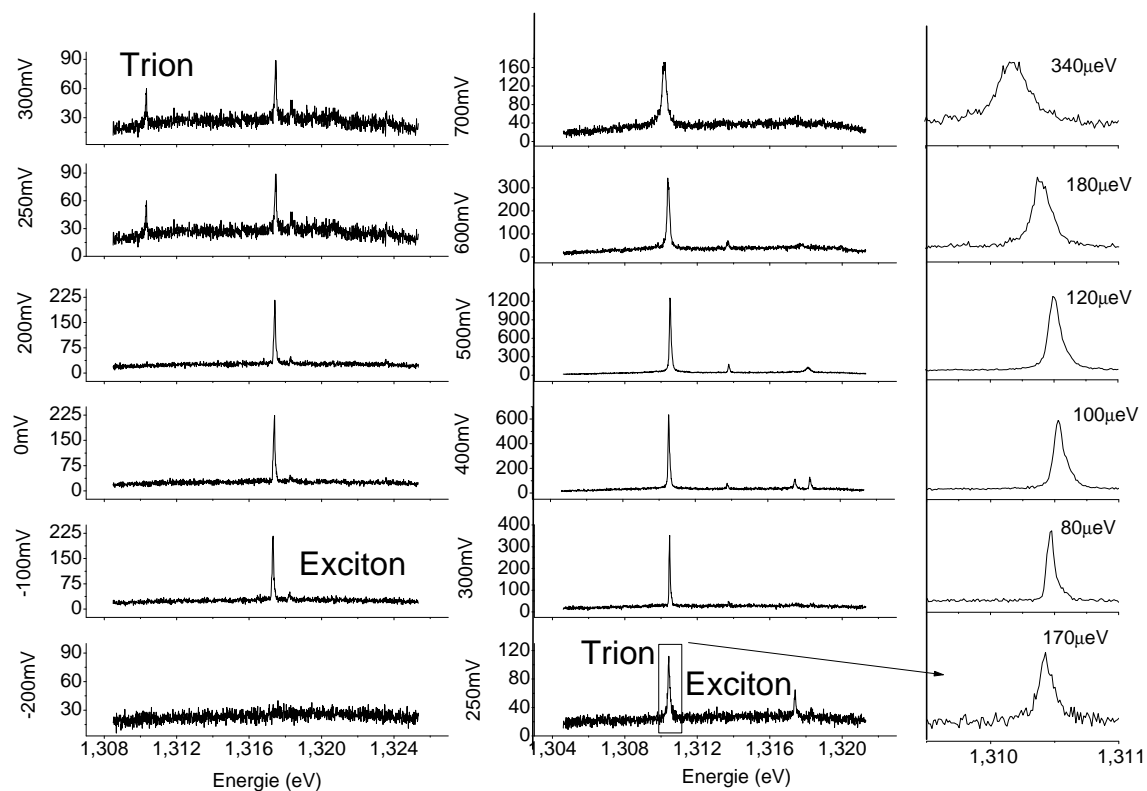


FIG. 3.13 – Gauche : Photoluminescence d’une boîte sous excitation dans la couche de mouillage en fonction de la tension appliquée ; milieu : Photoluminescence de la même boîte pour des tensions appliquées supérieures. Les abscisses ont été décalées en énergie. Droite : agrandissement de la raie du trion ; les largeurs de raie sont données pour chaque pic.

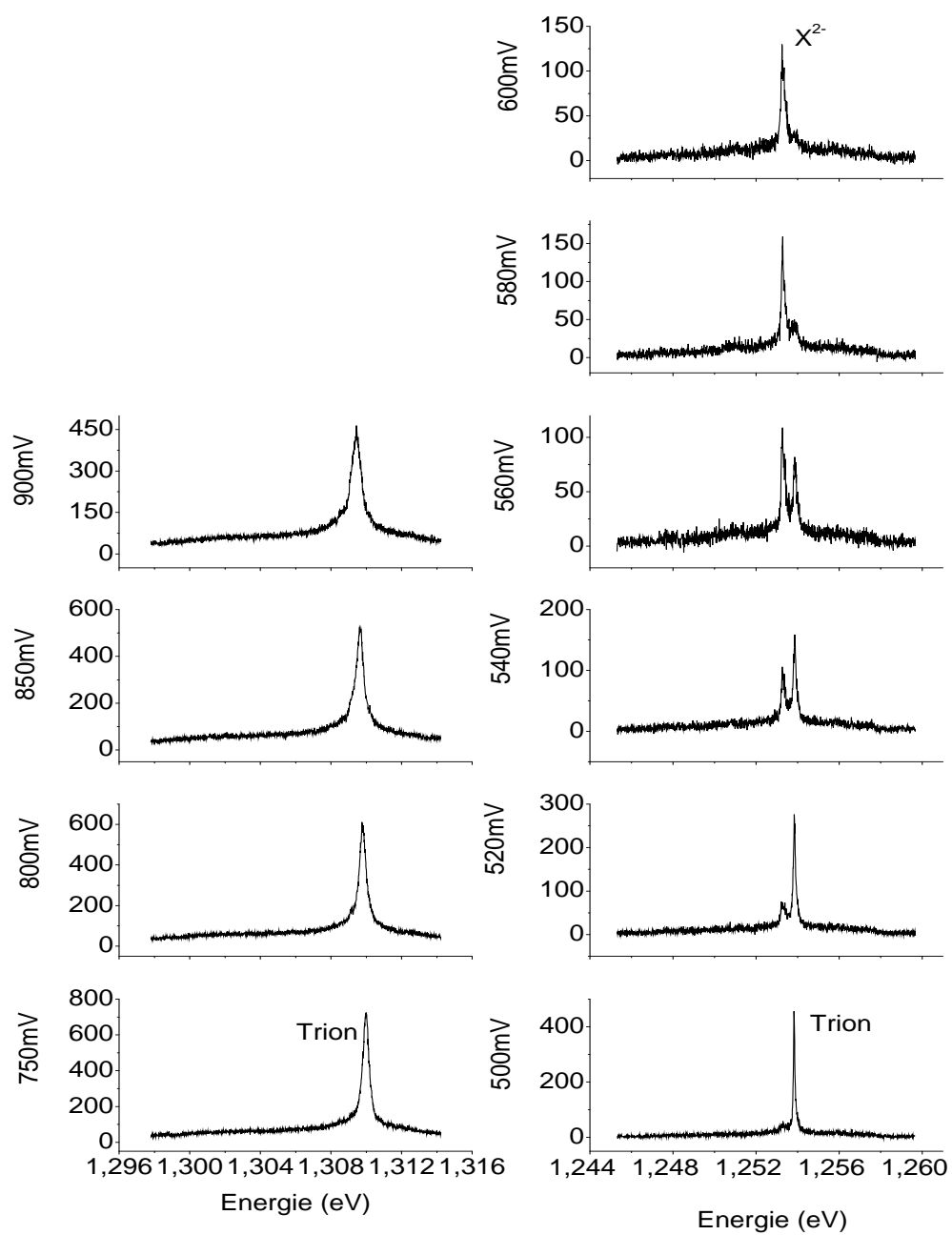


FIG. 3.14 – Gauche : Evolution du trion de la figure 3.13 en fonction de la tension pour $V > 700mV$ (A noter que le temps d'intégration est deux fois plus long que pour les spectres précédents). Droite : Evolution du trion d'une boîte luminescent à $1.26eV$.

3.3.3 Observation de X^{2-} et de $2X^-$

Si on continue d'augmenter la tension, le spectre évolue pour la boîte précédente comme présenté figure 3.14. A titre de comparaison est présentée à côté l'évolution avec la tension d'une autre boîte luminescent beaucoup plus bas en énergie vers $1.26eV$. On remarque que le trion situé sur le graphe de gauche perd en intensité, s'élargit considérablement et se décale vers les basses énergies.

Le trion de droite en revanche disparaît au profit d'une seconde raie, l'exciton doublement chargé X^{2-} .

3.3.3.1 Caractéristiques de X^{2-}

L'état fondamental de X^{2-} est composé de trois électrons, (deux sur l'état S et un sur l'état P) et d'un trou sur l'état S. Cet état luminesce en donnant naissance en principe à trois raies distinctes ; pour le comprendre, il faut étudier l'état de la boîte avant et après l'émission de la paire électron-trou :

- l'état initial peut avoir deux énergies possibles suivant que les spins du trou et de l'électron P sont parallèles ou antiparallèles. Ces deux états sont donc séparés par l'interaction d'échange électron P-trou S notée $2K_{eh}^{sp}$.
- l'état final quant à lui, est constitué après la recombinaison radiative, de deux électrons de spins parallèles ou anti-parallèles. La structure fine de cet état est identique au premier niveau excité de l'atome d'hélium : elle est composée d'un état triplet séparé d'un état singulet par l'interaction d'échange $2K_{ee}^{sp}$ entre les deux électrons.

En combinant les deux états initiaux et les deux états finaux possibles, on trouve trois raies de luminescence possibles, comme l'illustre la figure 3.15. Cette structure fine de X^{2-} a été observée par B. Urbaszek [21]. Ses résultats sont présentés figure 3.16. On appellera par la suite X_{γ}^{2-} le doublet haute énergie et X_{δ}^{2-} le singulet basse énergie.

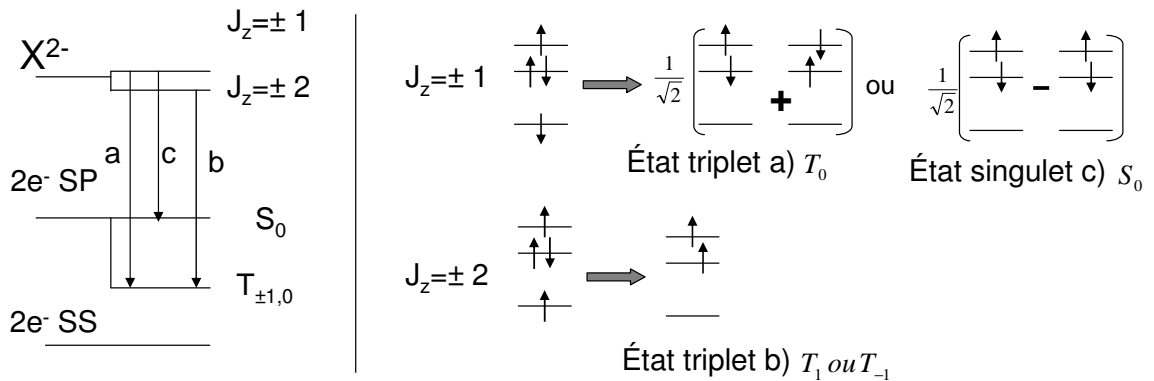


FIG. 3.15 – Evolution des deux états initiaux possibles pour une boîte contenant trois électrons et un trou. Remarque : J_z représente la projection du spin total des quatre particules, en continuant de considérer que le "spin" du trou est $\pm 3/2$

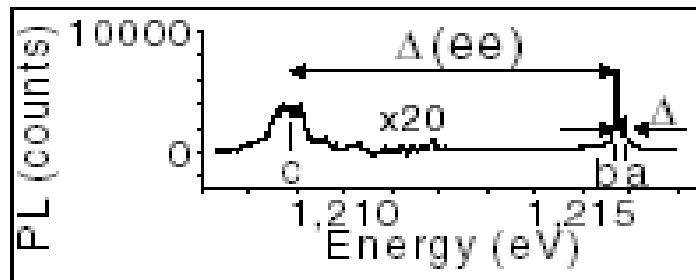


FIG. 3.16 – Structure fine de X^{2-} obtenue par B. Urbaszek. Les raies a et b correspondent à X_γ^{2-} , la raie c à X_δ^{2-} .

Il n'a pas jusqu'à présent été possible d'observer la structure fine du doublet haute énergie dans nos boîtes. Là encore, le plus ou moins fort confinement des porteurs joue un rôle important dans l'observation du signal de luminescence. L'exciton doublement chargé fait en effet intervenir un électron sur l'état P. Lorsque la tension augmente, le remplissage du fondamental avec deux électrons devient stable à condition qu'ils soient tous les deux sur le niveau S. L'état final après recombinaison qui est composé

d'un électron S et d'un électron P est en revanche instable; la durée de vie de cet état s'en trouve donc raccourcie, ce qui provoque l'élargissement des raies et la perte d'information sur la structure fine.

Un deuxième phénomène peut permettre d'expliquer également cette largeur de raie. B. Urbaszek ([23]) a étudié l'influence de la température sur les largeurs de raie de X^{2-} . Il observe qu'à partir de $20K$, il ne peut plus résoudre la structure fine de X_{γ}^{2-} ; son étude en fonction de la température montre par ailleurs que la largeur de raie croît beaucoup plus vite avec la température pour X^{2-} que pour l'exciton ou le trion. Il conclut de ses observations que c'est la présence de l'électron sur l'état P qui provoque ce comportement original de la largeur de raie de X^{2-} . Cet état P étant proche des états du continuum, l'état final de X^{2-} après recombinaison, peut diffuser grâce aux phonons, ce qui provoque l'élargissement. D'après ses observations, cet effet reste négligeable à $4K$ mais devient prépondérant dès $20K$, empêchant alors la résolution du doublet de X_{γ}^{2-} . Or, dans nos expériences, l'échantillon est fixé sur une plaque d'alumine qui est elle même collée sur un doigt froid à $10K$. L'utilisation de cette plaque même faiblement isolante, couplée à un échauffement local de l'échantillon dû aux radiations explique que la température sur l'échantillon avoisine plutôt les $15K$. Ce mécanisme est donc certainement à prendre en compte aussi.

La différence d'énergie entre la raie X_{γ}^{2-} et X^{-} est d'environ ([39]) :

$$\epsilon_{X^{-}} - \epsilon_{X_{\gamma}^{2-}} = J_{ee}^{ps} - J_{eh}^{ps}$$

Avec J_{ee}^{ps} l'interaction de Coulomb entre un électron S et un P et J_{eh}^{ps} celle entre un électron P et un trou S. Cette différence d'énergie a été estimée par [39] entre 0 et $0.7meV$ conformément à ce que l'on observe ($0.5meV$ figure 3.14).

Cette instabilité de l'état P nous empêche également d'observer la raie X_{δ}^{2-} . Celle-ci est par nature moins intense et plus large. En effet, la recombinaison de cette raie laisse dans la boîte un état S_0^* particulièrement instable puisque la thermalisation ne nécessite aucun renversement du spin d'un des deux électrons (contrairement à T_0 et T_1). La largeur de cette raie est donc plus grande, comme l'a observé B. Urbaszek [23] : à $4K$, il observe un facteur supérieur à 10 entre les deux largeurs de raie ; A $20K$,

le diffusion par les phonons acoustiques agit selon lui plus efficacement sur X_δ^{2-} car l'état final S_0^* est plus haut en énergie que T_0 ou T_1 , donc plus fortement couplé aux états du continuum. La raie X_δ^{2-} est donc probablement noyée sur nos échantillons dans le bruit de la mesure.

On peut noter enfin qu'il n'a pas été possible d'observer X^{2-} pour les boîtes luminescant haut en énergie vers $1.3eV$. Comme illustré figure 3.14, le trion pour ces boîtes s'élargit considérablement et on ne peut voir le passage en tension de la luminescence de X^- à celle de X^{2-} . Cette différence de comportement est sans doute liée à la position de l'état P. Si celui-ci est proche de la couche de mouillage, son chargement va s'effectuer pour une tension similaire à celle du chargement du continuum. La présence de nombreux électrons au voisinage de la boîte peut dès lors provoquer cet élargissement des raies.

3.3.3.2 Le biexciton chargé $2X^{-1}$

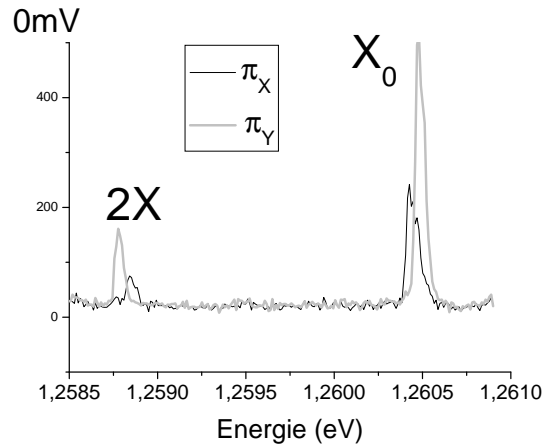
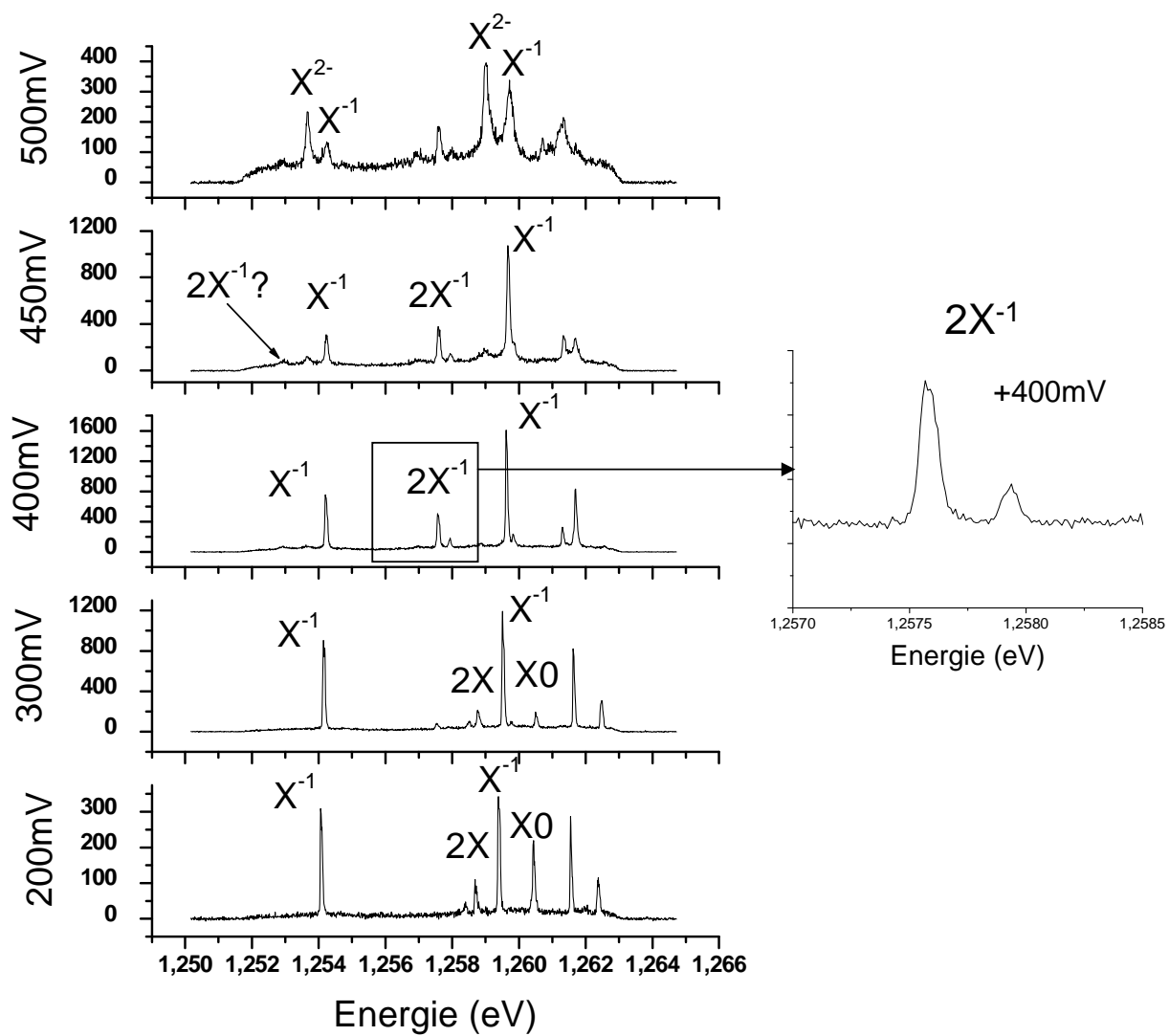


FIG. 3.17 – Mesure de photoluminescence résolue en polarisation linéaire pour un couple exciton biexciton. X et Y sont les axes 110 et $\bar{1}\bar{1}0$ de l'échantillon

Si on augmente la puissance d'excitation, on est en mesure d'observer des raies supplémentaires : le biexciton $2X$ et le biexciton chargé une fois $2X^{-1}$.

FIG. 3.18 – Observation de $2X^{-1}$

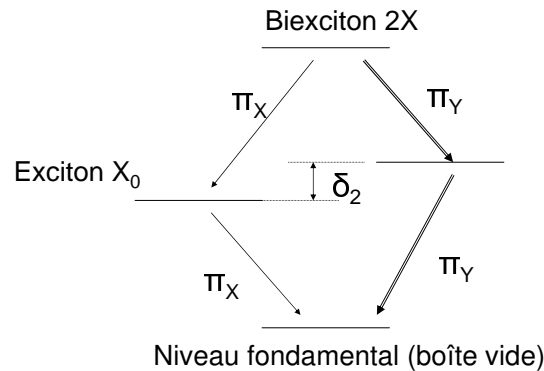


FIG. 3.19 – Schéma des transitions optiques polarisées linéairement de l'exciton et du biexciton pour une boîte quantique de symétrie réduite

La figure 3.18 présente l'évolution en fonction de la tension d'un exciton. Les spectres ont été obtenus sous excitation dans la couche de mouillage avec une puissance du laser d'environ $10^4 W cm^{-2}$. Le trion correspondant à cet exciton est la raie tout à gauche du spectre, l'autre trion correspondant à un exciton luminescent à plus haute énergie.

On remarque tout d'abord une raie située environ $1,2 meV$ en dessous de X_0 . Cette raie a été identifiée comme étant le biexciton $2X$ par des mesures de photoluminescence résolue en polarisation linéaire (voir figure 3.17). L. Besombes, [40], montre en effet que la recombinaison du biexciton en polarisation linéaire π_X ne peut se faire qu'en laissant dans la boîte un exciton lui-même polarisé linéairement π_X (Voir illustration figure 3.19).

On constate sur la figure 3.18 que $2X$, X_0 et X^{-1} coexistent sur une plage de tension allant de 100 à $300 mV$. $2X$ et X^{-1} coexistent naturellement pour ces basses tensions car il suffit qu'une boîte capture deux trous au lieu d'un pour que $2X$ luminesce à la place de X^{-1} (cf diagramme fin du chapitre 3). En revanche, quand la tension augmente, la capture d'un troisième électron par la boîte devient stable et on observe la luminescence du biexciton chargé $2X^{-1}$.

La structure fine de $2X^{-1}$ est également composée de plusieurs raies :

- ◆ l'état initial est composé de deux électrons sur le niveau S, de deux trous sur le niveau S et d'un électron sur le niveau P. Aucune interaction d'échange ne peut intervenir et l'état initial est donc dégénéré $J_z = \pm 1/2$.
- ◆ L'état final de la recombinaison est le trion chaud dont la structure a été discutée au chapitre 2. On retrouve donc comme illustré sur la figure 3.20 trois transitions possibles du fait de trois états finaux possibles : $S_0^* \otimes S_v^\uparrow$, $T_0 \otimes S_v^\uparrow$ et $T_1 \otimes S_v^\downarrow$.
- ◆ $S_0^* \otimes S_v^\uparrow$ est séparé des deux autres par l'interaction d'échange électron-électron $2K_{ee}^{sp}$. De même que pour X_δ^{2-} , cette raie est large compte tenu de la durée de vie très courte de l'état final. On ne l'observe pas sur nos spectres.
- ◆ $T_0 \otimes S_v^\uparrow$ et $T_1 \otimes S_v^\downarrow$ sont séparés de $\frac{1}{2}(2K_{eh}^{ss} + 2K_{eh}^{ps})$ qui vaut $370\mu eV$ figure 3.18. Le doublet de X_γ^{2-} mesuré par B. Urbaszek étant $2K_{eh}^{ps} = 200\mu eV$, il en déduit que $K_{eh}^{ss} > K_{eh}^{ps}$, ce qui est le cas aussi pour nos boîtes car on ne peut résoudre le doublet de X_γ^{2-} mais sa largeur à mi-hauteur est de $150\mu eV$ donnant ainsi une limite haute à $2K_{eh}^{ps}$.

La largeur de raie associée à $T_0 \otimes S_v^\uparrow$ et à $T_1 \otimes S_v^\downarrow$ rend compte de l'efficacité couplée de plusieurs phénomènes : l'effet tunnel agissant sur l'électron dans l'état P, le couplage avec les phonons acoustiques et la durée de vie intrinsèque de ces états avant la relaxation vers le fondamental. On retrouve dans l'étude de $2X^-$ les questions abordées au chapitre 2 sur la durée de vie du trion brillant.

Les largeurs de raie des doublets de $2X^-$ obtenus sont entre $120\mu eV$ et $80\mu eV$. Elles sont identiques pour les deux raies du doublet. Nous ne sommes pas dans ce cas limités par la résolution expérimentale de l'expérience. Ces valeurs donnent un temps de vie de ces états supérieur à $5ps$, ce qui implique que les états triplet du trion chaud thermalisent en plus de $5ps$. Ce résultat ne permet pas de conclure quant à l'étude menée au chapitre 2 : le taux de polarisation négatif observé au bout d'une dizaine de picosecondes après l'excitation optique s'explique peut-être par la thermalisation des états triplet du trion chaud.

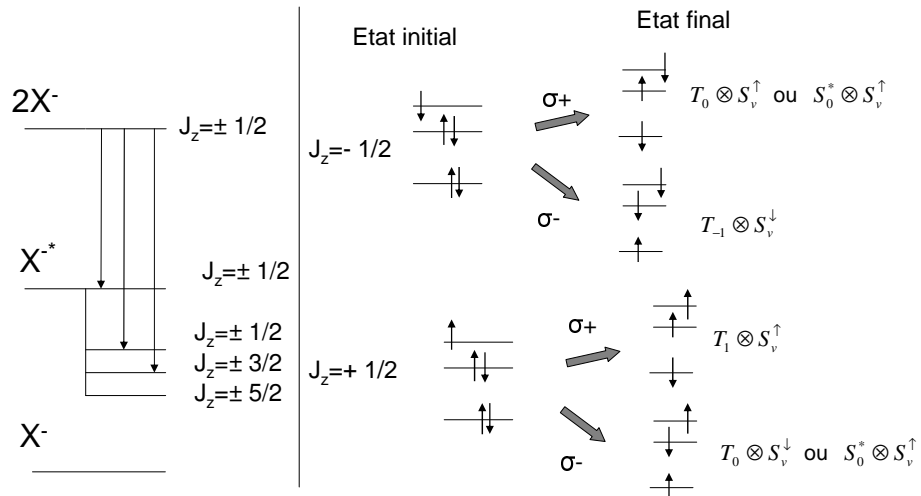


FIG. 3.20 – Observation de $2X^-$; S_v^\downarrow est l'état de trou lourd de spin up

3.3.4 Observation de X^+

La figure 3.21 présente deux séries de spectres obtenus pour deux puissances différentes : $10^3 W cm^{-2}$ à gauche et $2 \cdot 10^4 W cm^{-2}$ à droite. A faible puissance, les premières raies qui apparaissent sont deux excitons à $-100 mV$; ils ont été identifiés comme tels en réalisant des mesures résolues en polarisation linéaire qui montrent un dédoublement des deux raies. A forte puissance, on observe tout d'abord dès $V = -500 mV$ une raie puis à partir de $V = -100 mV$ les deux excitons précédents. La raie qui apparaît à forte puissance a les caractéristiques du trion chargé positivement X^+ attaché à l'exciton de gauche sur les courbes précédentes. Un autre X^+ attaché à l'exciton de droite apparaît dans les mêmes conditions à plus haute énergie.

Le trion chargé positivement est composé de deux trous et d'un électron. L'écart en énergie entre l'exciton et X^+ s'écrit d'après [39] :

$$\epsilon_{X^+} - \epsilon_X = J_{hh}^{ss} - J_{eh}^{ss}$$

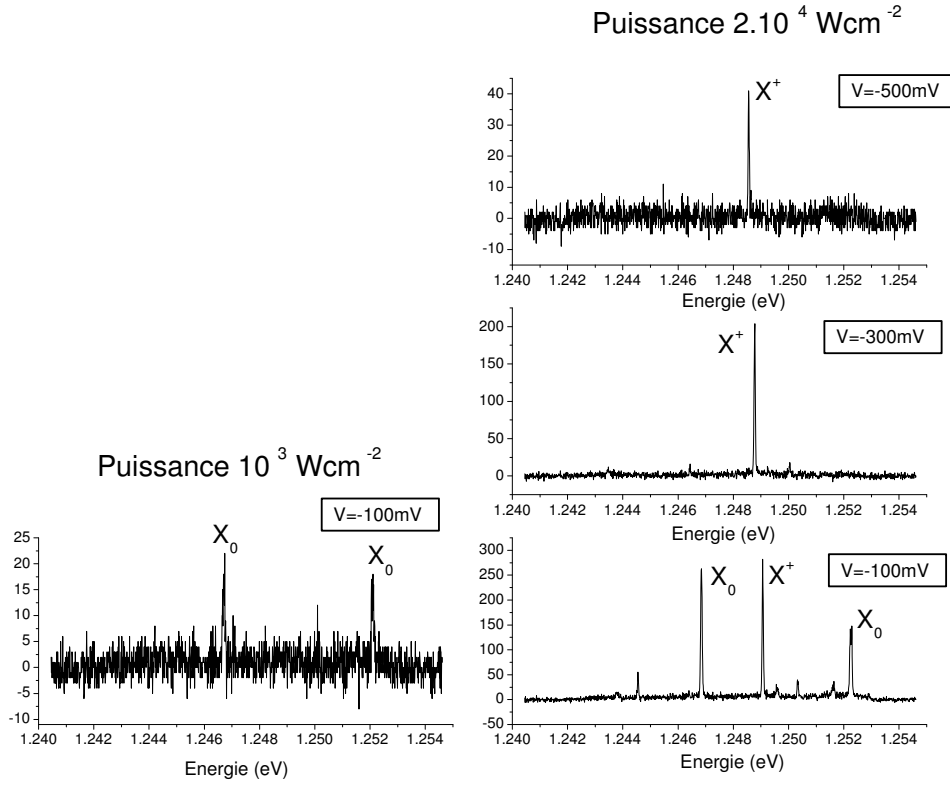


FIG. 3.21 – Evolution d’un spectre avec la tension pour deux puissances d’excitation différentes. Energie d’excitation dans la couche de mouillage.

Cet écart vaut pour nos mesures environ 2.2 meV . il est bien entendu positif pour la même raison que celle soulevée lors de l’étude de X^- : la fonction d’onde du trou étant plus localisée, les inégalités suivantes sont vérifiées :

$$J_{hh}^{ss} > J_{eh}^{ss} > J_{ee}^{ss}$$

L’observation de X^+ seul à basse tension pour des puissances d’excitation élevées est une nouvelle manifestation de l’effet tunnel. Entre -500 mV et -100 mV , la présence d’un seul trou dans la boîte ne suffit pas à stabiliser suffisamment un électron pour

permettre la luminescence avant l'échappement de l'électron par effet tunnel. Deux trous en revanche stabilisent suffisamment cet électron et permettent l'observation de X^+ (Voir diagramme de la fin du chapitre). Quand la tension atteint $-100mV$, la présence d'un seul trou permet désormais de stabiliser l'électron et l'exciton apparaît.

3.4 Bilans

3.4.1 Phases successives du remplissage des boîtes

On peut maintenant faire le bilan des écarts en tension qui existent entre les tensions d'apparition des différentes raies chargées d'une même boîte. Pour ce faire, nous allons évaluer la différence d'énergie qu'il faut apporter à la boîte par l'intermédiaire de la tension appliquée, pour passer d'une raie à une autre. On considère que le remplissage des boîtes est immédiat à partir du moment où le potentiel chimique de l'électrode μ_E égale le potentiel chimique μ_N de la boîte. Ce dernier est défini par la différence : $\mu_{BQ}(N) = E_{N_h}(N) - E_{N_h}(N - 1)$ avec $E_{N_h}(N)$ l'énergie de N électrons dans une boîte possédant N_h trous et $\mu_{BQ}(1) = E_S$, E_S l'énergie du niveau fondamental de la boîte. $\mu_{BQ}(N)$ est donc la différence d'énergie à apporter pour passer d'un système contenant $N - 1$ électrons à un système contenant N électrons, et ceci à nombre de trous fixé. Dans une approche perturbative à l'ordre le plus bas, basée sur les niveaux d'énergie à une particule et les termes directs seulement entre les différentes particules pris 2 à 2, $E_{N_h}(N)$ s'écrit :

$$E_{N_h}(N) = \sum_{i=1}^N E_i + \sum_{i=1}^N J_{ee}^{ii} + \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^{N_h} J_{eh}^{ij}$$

La figure 3.23 permet de résumer les différentes valeurs que doit prendre μ_E pour introduire successivement des électrons. Arrêtons nous tout d'abord sur la première ligne du diagramme quand il n'y a aucun trou dans la boîte :

1. Lorsque $\mu_E < \mu_{BQ}(1)$, aucun électron n'est stable dans la boîte. Dès que $\mu_{BQ}(1) \leq \mu_E < \mu_{BQ}(2)$, un électron peut passer par effet tunnel. La boîte

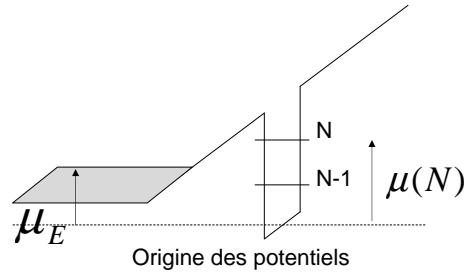


FIG. 3.22 – Condition de remplissage des niveaux d'énergie

est donc en équilibre avec un électron et pour $\mu_E > \mu_{BQ}(2)$ avec deux électrons. $\mu_{BQ}(2)$ est la différence d'énergie entre l'état à deux électrons sur le fondamental et l'état à un électron : $\mu_{BQ}(2)$ est donc égal à $E_S + J_{ee}^{SS}$.

2. Lorsque de même $\mu_{BQ}(3) \leq \mu_E$, un électron stable sur le niveau P apparaît. $\mu_{BQ}(3)$ est la différence d'énergie entre une boîte contenant trois électrons et une boîte en contenant deux. $\mu_{BQ}(3)$ est donc égal à $E_P + 2J_{ee}^{SP}$.

On obtient ainsi le diagramme de chargement de la boîte qui représente les zones de stabilité de 1, 2, etc électrons dans une boîte.

Le raisonnement précédent peut se répéter si on considère maintenant qu'un trou est déjà présent dans la boîte. On introduit alors le potentiel de la boîte à un trou : $\mu_{BQ}(N, N_h = 1)$.

La présence du trou déplace les zones de stabilités vers les basses tensions du fait de l'attraction coulombienne entre les électrons et le trou.

Une conséquence majeure de ce déplacement est que l'exciton est observable à partir du moment où l'électron est stabilisé par la présence du trou. Ceci se fait à partir d'un potentiel $\mu_E = E_S - J_{eh}^{ss}$ au lieu $\mu_E = E_S$ en absence de trou. On peut donc observer la luminescence de l'exciton alors que l'électron seul serait instable dans la boîte.

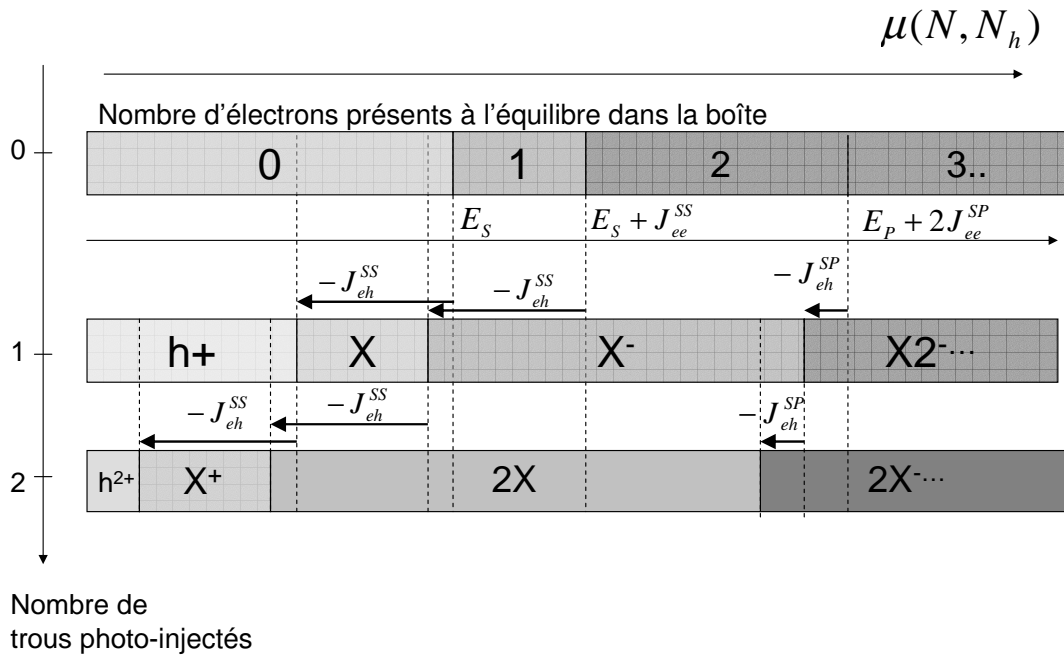


FIG. 3.23 – Schéma récapitulatif des états d'équilibre d'une boîte en fonction du potentiel chimique μ_E de l'électrode n GaAs et pour 0, 1 ou 2 trous photoinjectés.

En ce qui concerne l'apparition du trion, la présence d'un trou permet de même l'observation de X^- dès que le potentiel vérifie $\mu_E = E_S + J_{ee}^{SS} - J_{eh}^{SS}$. $J_{ee}^{SS} - J_{eh}^{SS}$ étant négatif, le trion apparaît alors même qu'aucun électron n'est stable seul dans la boîte. L'observation du diagramme nous permet de comprendre qu'on observera donc essentiellement le trion quand 1 ou 2 électrons sont stables à l'équilibre dans la boîte.

Enfin notons que le présence de deux trous dans la boîte stabilise comme prévu l'électron pour des tensions très faibles et permet l'observation de X^+ .

Cette étude des phases successives du remplissage des boîtes nous sera très utile au chapitre suivant.

3.4.2 Structure de l'échantillon

L'étude de cet échantillon nous a permis de nous familiariser avec les structures à modulation de charge. Il ressort de cette étude que cette structure est tout à fait adaptée à l'étude des raies simplement chargée X^{-1} et $2X^{-1}$. En revanche, on observe difficilement X^{2-} , on n'observe pas $2X^{2-}$ ni les raies triplement chargées. La raison essentielle pouvant être invoquée pour expliquer cette absence est le trop faible confinement de l'état électronique P des boîtes doublé d'une température d'étude probablement trop élevée. Pour améliorer la structure, le plus simple serait bien entendu de faire croître des boîtes plus profondes en énergie, mais ceci au détriment d'une bonne sensibilité des détecteurs Silicium. L'observation des raies triplement chargées a été possible pour B. Urbaszek pour des boîtes luminesçant entre $1.25eV$ et $1.3eV$, laissant suggérer qu'une réflexion sur le choix des conditions de croissance ou le détail de la structure (distance au plan de dopage principalement) devrait être menée dans la perspective d'étudier ces états multiplement chargés.

Chapitre 4

Polarisation de luminescence des excitons chargés de boîtes uniques

Ce chapitre présente les informations nouvelles que nous avons obtenues sur le temps de relaxation du spin par l'étude de la polarisation circulaire de luminescence réalisée sur les excitons chargés de boîtes uniques. La première partie expose les informations apportées par l'excitation des boîtes depuis la couche de mouillage ; la seconde partie concerne l'excitation intra-boîte tandis que la dernière confirme les résultats précédents en étudiant la polarisation de luminescence résolue en temps.

4.1 Excitation dans la couche de mouillage

La réalisation de structures à contrôle de charges nous permet désormais d'étudier la photoluminescence résolue en polarisation circulaire de complexes excitoniques chargés de boîtes uniques : l'exciton, le trion et partiellement X^{2-} et $2X^-$. Les résultats du chapitre 2 nous invitent à penser qu'une ou plusieurs de ces raies devraient luminescer avec un taux de polarisation circulaire négatif lorsqu'on excite dans la couche de mouillage avec une lumière polarisée.

CEPENDANT, toutes les mesures expérimentales que nous avons réalisées sur ces nouveaux échantillons n'apportent pas ce résultat : que ce soit sur boîtes uniques ou

sur ensemble de boîtes, le taux de polarisation circulaire observé lorsqu'on excite dans la couche de mouillage est nul, voir même légèrement positif.

Quelles peuvent être les raisons d'une telle différence de comportement entre les échantillons dopés chimiquement et les structures Schottky ?

- ◆ On pourrait se demander si l'anisotropie de nos boîtes est suffisante pour permettre d'observer ce taux de polarisation négatif. C'est en effet cette anisotropie qui nous a permis d'expliquer son origine au chapitre 2. L'échantillon *B1* présenté au chapitre 2 présentait un dédoublement de l'état électronique P de 5 à 7meV , démontrant l'existence d'une forte anisotropie. Pour l'essentiel des excitons observés dans l'échantillon *E2*, le dédoublement de l'exciton n'est pas mesurable, il est donc inférieur à $30\mu\text{eV}$. Dans l'ensemble, les nouvelles boîtes sont peut-être moins anisotropes. Mais cela ne suffit peut-être pas à expliquer l'absence de taux de polarisation négatif : en effet, nous ne l'avons également pas observé sur les raies chargées associées à des boîtes dont l'exciton était fortement dédoublé ($> 80\mu\text{eV}$).
- ◆ Une deuxième différence, beaucoup plus importante, vient des caractéristiques de l'état P. Dans les structures Schottky, le trion luminesce lorsque l'état fondamental de la boîte remplie avec un électron est à l'équilibre avec l'électrode de GaAs n^+ . L'état P n'est en revanche pas à l'équilibre ; tout électron sur cet état est donc susceptible de s'échapper par effet tunnel de la boîte. Or, le chapitre 2 nous a appris que l'observation d'un taux de polarisation négatif est due à l'évolution des états "Pauli bloqués" du trion chaud pour lesquels les deux électrons ont la même orientation de spin. Dans ces états, un des électrons est situé sur l'état P. L'évolution du trion chaud conduisant au taux de polarisation négatif est gouvernée notamment par l'interaction d'échange. Si le temps d'action de celle-ci est plus long que celui d'échappement par effet tunnel, on n'observera aucun taux de polarisation négatif. Là encore, il serait bien utile de travailler avec des boîtes plus profondes.

4.2 Excitation intraboîte

L'absence de taux de polarisation négatif sous excitation dans la couche de mouillage est la signature qu'on n'arrive pas à conserver le spin électronique photocréé dans la couche de mouillage. Mais qu'en est il si on excite intraboîte ?

4.2.1 Evolution du taux de polarisation circulaire de luminescence en fonction de la tension

4.2.1.1 Etude sur ensemble de boîtes

La figure 4.1 présente l'intensité de luminescence résolue en polarisation circulaire de l'échantillon *E1* en excitant à $1.34eV$ et en détectant à $1.27eV$, en fonction du voltage appliqué. Le taux de polarisation associé est présenté sur la même figure. Le choix de l'énergie d'excitation et de celle de détection a été gouvernée par l'idée que la première transition entre états excités P-P pourrait se situer environ $70meV$ au-dessus du fondamental. On constate immédiatement une évolution forte du taux en fonction du remplissage électronique des boîtes. A très basse tension, lorsque les boîtes luminescent faiblement et n'émettent que des excitons ou des trions chargés positivement, le taux est fortement positif. En augmentant la tension, le taux chute et atteint une valeur minimale vers $V = 100mV$. On sait d'après le chapitre 3 que cette zone de tension correspond au début du chargement des boîtes, donc juste avant que les trions X^- apparaissent. Pour une tension comprise entre 200 et $550mV$, le taux augmente à nouveau puis chute, de même que la luminescence à partir de $550mV$, tension qui correspond à l'apparition de X^{2-} .

Avant de donner une interprétation de ce résultat, intéressons nous à la luminescence de boîtes uniques.

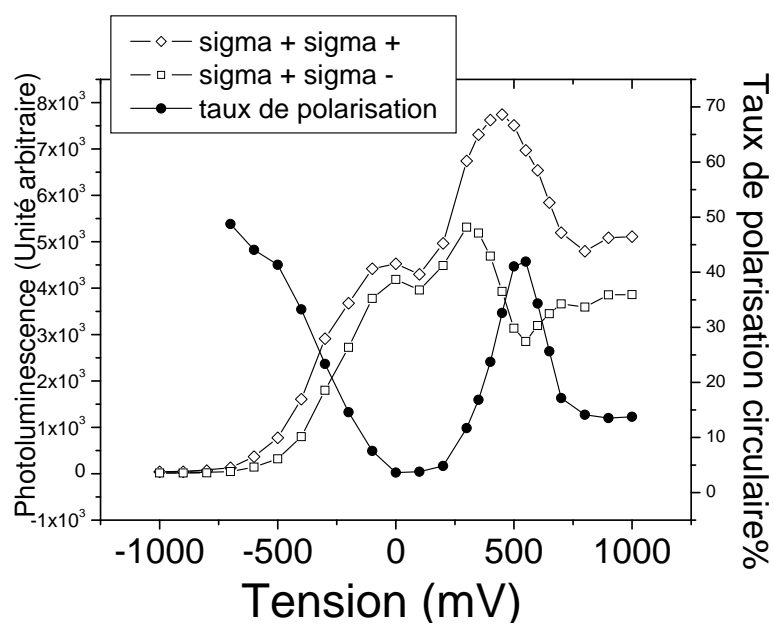


FIG. 4.1 – Gauche : Photoluminescence résolue en polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes en fonction du voltage appliqué. Excitation à 1.34eV , détection à 1.27 eV . Droite : Taux de polarisation circulaire associé

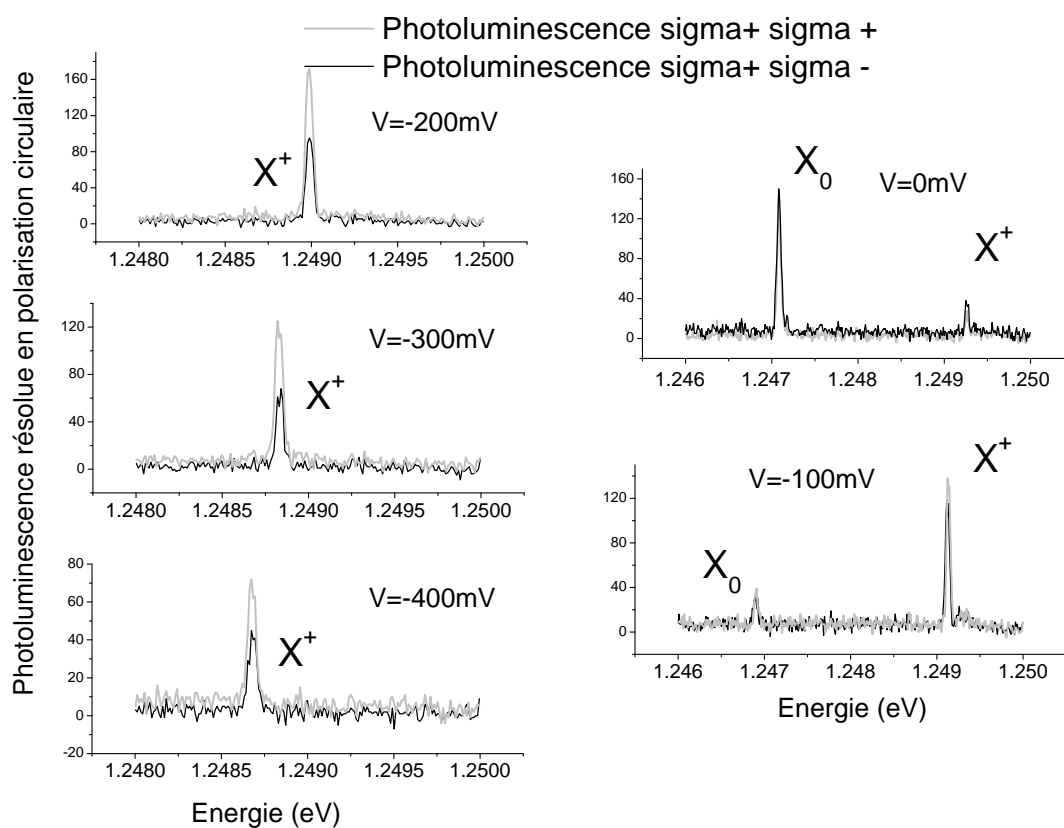


FIG. 4.2 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire du trion X^+ et de l'exciton d'une boîte en fonction de la tension appliquée. Excitation à 1.316eV , puissance d'excitation : 6.10^4Wcm^{-2} . L'échelle des abscisses est modifiée entre les graphes de droite et de gauche

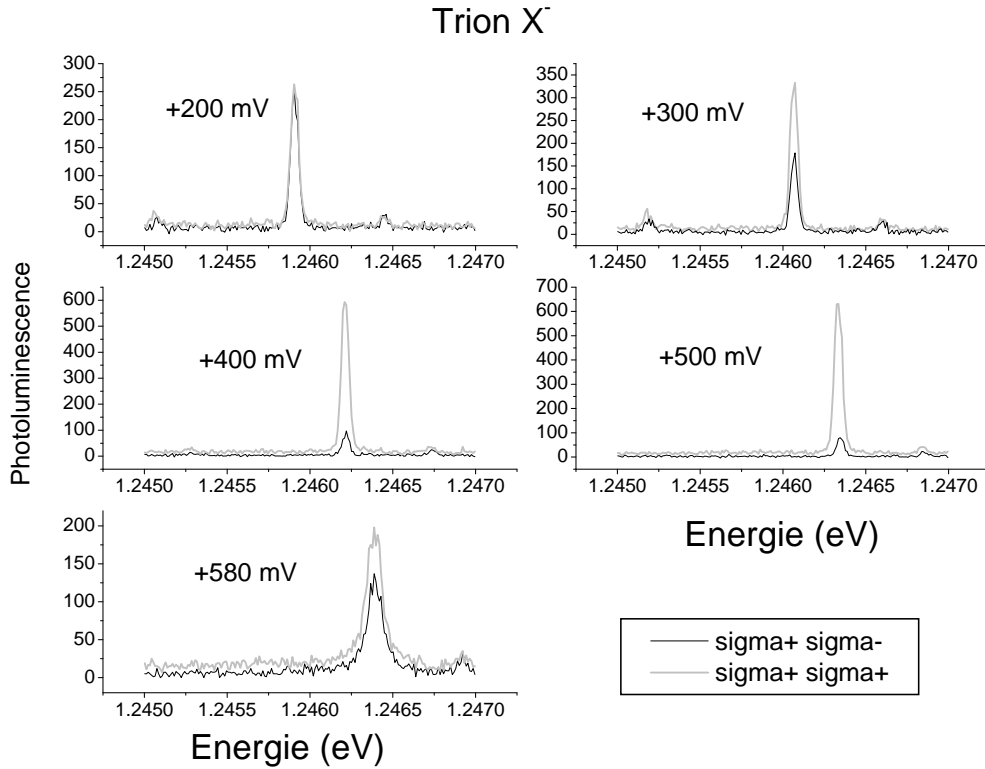


FIG. 4.3 – Photoluminescence résolue en polarisation circulaire du trion X^- d'une boîte en fonction de la tension appliquée. Excitation à 1.316eV , puissance d'excitation : 6.10^4Wcm^{-2} .

4.2.1.2 Etude sur boîte unique

La figure 4.2 présente l'évolution typique du taux de polarisation de l'exciton et du trion X^+ d'une boîte émettant vers 1.25eV . L'énergie d'excitation est de 1.316eV , soit donc 66meV au dessus de l'énergie du niveau fondamental de la boîte étudiée. Comme nous pouvons le voir, le trion X^+ est polarisé positivement, tandis que l'exciton est non polarisé. La polarisation de l'exciton varie cependant d'une boîte à l'autre ; il peut être polarisé positivement avec un taux ne dépassant cependant jamais les $+30\%$.

La figure 4.3 présente l'évolution typique d'un trion X^- d'une boîte émettant vers 1.252eV et excitée à 1.316eV : X^- apparaît vers $V = 200\text{mV}$. Il est tout d'abord

peu polarisé puis au fur et à mesure que la tension augmente, son taux de polarisation augmente jusqu'à une valeur de +75% ici. Selon les boîtes, ce taux maximum varie entre 40 et 90%. Au delà de cette tension, le taux chute et le trion disparaît en s'élargissant au profil de X^{2-} non polarisé (non montré ici). Il faut noter ici l'influence du masque optique percé de trous ($1\mu m$ de diamètre), qui a été utilisé pour réaliser ces mesures. Ce masque est sans doute à l'origine de la grande dispersion de valeurs obtenues pour le taux maximum de X^- . En effet, si la boîte n'est pas centrée par rapport au trou, des réflexions du signal de luminescence sur les bords du trou peuvent modifier la polarisation du signal résultant. Toutes les mesures réalisées sans masque ont révélé des taux maximum de près de 100%, laissant suggérer que le masque optique introduit un taux négatif.

Ces mesures sur boîtes uniques permettent de retrouver cependant tout à fait l'évolution en fonction de la tension du taux de polarisation circulaire observé sur ensemble de boîtes. Il reste à comprendre les mécanismes qui peuvent conduire à ces résultats.

4.2.1.3 Discussion

Intéressons nous tout d'abord à l'exciton observé pour les champs forts (tension négative), c'est à dire lorsque l'effet tunnel limite sa recombinaison radiative. Observer un taux de polarisation circulaire positif suppose qu'on a conservé une partie de l'information portée par les spins de l'électron et du trou photoinjectés. Mais est ce l'électron qui a conservé son spin ou le trou, ou encore les deux? Pour répondre à cette question, il faut d'abord s'interroger sur la nature de l'état que l'on excite dans la boîte en excitant entre 60 et $70meV$ au dessus du niveau du fondamental. Sur une boîte individuelle, on peut vraisemblablement écarter la transition entre états excités de la boîte, étant donné la faible probabilité d'exciter "par hasard" une telle transition discrète. Cette affirmation est confirmée en variant l'excitation de la photoluminescence (PLE) : l'intensité de la photoluminescence et le taux de polarisation ne dépendent pas de façon critique du choix de l'énergie d'excitation. Quelles autres transitions sont possibles?

◆ Les transitions mixtes entre un état discret et un continuum vont très certainement intervenir. La figure 2.4 présentée au chapitre 2 donne une image de la position de ces transitions pour des boîtes luminesçant extrêmement bas en énergie à $1.12eV$. Pour des boîtes luminesçant vers $1.25eV$, on peut avoir une idée de leur position en supposant que les énergies de confinement du trou E_I^h et de l'électron E_I^e , mesurées à partir de la couche de mouillage, vérifient $E_I^e/E_I^h = 2.2$. La figure 4.4 résume les énergies caractéristiques de ces transitions pour une boîte non chargée. La première transition $WL_h - S_e$ apparaît vers $1.3eV$ et fait intervenir la transition entre le continuum de trous et le niveau fondamental électronique. En excitant entre 60 et $70meV$ au dessus du fondamental situé à $1.25eV$, on excite donc très certainement ces transitions. La première transition mixte faisant intervenir le niveau fondamental de trou, $WL_e - S_h$ est quant à elle bien plus haute en énergie et peut être écartée. Si ces transitions interviennent, c'est donc l'électron qui serait injecté dans les boîtes et qui conserverait son spin ; le trou quant à lui serait créé dans le continuum et aurait plus d'opportunités de perdre son spin.

Ce raisonnement est à reconsidérer lorsque la boîte est remplie avec un électron. La présence d'un électron dans la boîte respectivement baisse (augmente) l'énergie de la transition mixte $WL_e - S_h$ ($WL_h - S_e$) de $25meV$ environ, en raison de l'interaction de Coulomb entre l'électron résident et le porteur photocréé dans la boîte. Ce phénomène est amplifié si la boîte possède deux électrons et la transition $WL_h - S_e$ devient même impossible, nous conduisant à penser que quand la boîte est chargée avec deux électrons, il est possible en excitant entre 60 et $70meV$ au dessus du fondamental, d'injecter directement un trou polarisé en spin sur l'état fondamental S_h .

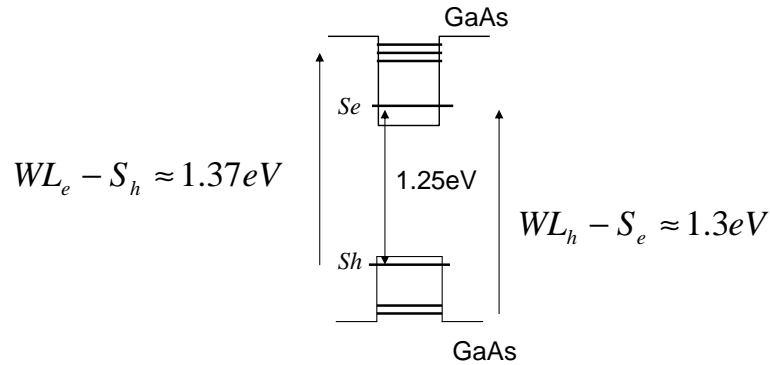


FIG. 4.4 – Position approximative des états mixtes

- ◆ Un autre type de transitions à considérer sont les répliques à un et deux phonons. Y. Toda ([41]) a réalisé des spectres d'excitation de photoluminescence (PLE) sur des boîtes uniques d'InGaAs luminescent entre $1.23eV$ et $1.31eV$. Il observe au voisinage d'une énergie de $65meV$ supérieure à celle de l'énergie de détection de très nombreuses raies uniques dont le nombre et la position spectrale varient d'une boîte à l'autre. Il attribue l'existence de ces raies à un processus Raman résonnant faisant intervenir deux phonons optiques : il y a absorption lorsque l'énergie d'excitation est exactement égale à l'énergie du fondamental additionnée de l'énergie de deux phonons LO. Cette interprétation en terme de diffusion Raman mérite cependant d'être discutée. Ces raies pourraient être attribuées plus simplement à un processus d'absorption dans un état mixte suivi d'un processus de relaxation favorisé lorsque l'absorption se fait exactement à deux phonons optiques de la recombinaison.

La présence de nombreuses raies dans les mesures de Y. Toda et non d'une seule pourrait être attribuée à l'existence de phonons dits localisés qui peuvent exister quand les contraintes ou la présence d'Indium détruisent partiellement l'ordonnancement du réseau cristallin. Dans le cas où l'on excite par hasard l'une de ces transitions, on injecte donc intraboîte des porteurs polarisés en spin, puisque le processus d'émission de phonons conserve le spin.

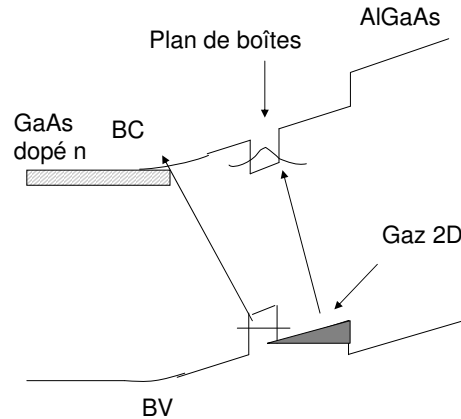


FIG. 4.5 – Position approximative des états mixtes

- ◆ Un dernier type de transitions envisageables sont les transitions croisées (dans l'espace réel, voir figure 4.5) entre le niveau $0D$ de la bande de valence (niveau de boîte) et les états inoccupés du continuum d'électrons de la bande de conduction d'une part et entre les niveaux de valence situés dans le puits $2D$ et le niveau électronique $0D$ de conduction d'autre part. Quand la tension diminue, le niveau fondamental du trou peut effectivement être dans le gaz $2D$. Le recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou au niveau des barrières de *GaAs* en contact avec le plan de boîtes est cependant tout à fait négligeable (longueur de pénétration de l'ordre d' 1\AA pour le fonction d'onde du trou). Ces transitions sont donc à écarter.

En conclusion, on retiendra que l'excitation entre 60 et 70meV au dessus du niveau fondamental fait intervenir les transitions mixtes entre le continuum de la couche de mouillage et les états confinés. Lorsque les boîtes ne sont pas chargées, l'excitation crée un électron polarisé en spin directement sur le niveau fondamental de la boîte. En revanche, lorsqu'elles sont chargées avec deux électrons, l'excitation crée directement un trou polarisé en spin.

4.2.1.4 Polarisation de l'exciton neutre X_0

Le taux de polarisation de luminescence de X_0 varie d'une boîte à l'autre. Il est tantôt positif (taux inférieur à 30%), tantôt nul quand il apparaît sous excitation intraboîte. Une étude plus précise doit encore être menée pour déterminer l'influence sur ce taux de l'énergie d'excitation, du confinement de l'état fondamental et de l'anisotropie. On peut cependant décrire qualitativement ce qui peut arriver aux spins injectés.

Que ce soit sous excitation quasi-résonnante grâce aux répliques à deux phonons ou par l'intermédiaire d'une transition mixte, l'observation d'un taux de polarisation non nul signifie qu'on réussit parfois à injecter un exciton dans l'état fondamental brillant avec un moment angulaire $Jz = +1$. Son évolution est dès lors gouvernée par trois temps caractéristiques : la période des oscillations de Rabi qui vont intervenir si la boîte est anisotrope et les temps de vie T_1 et de cohérence T_c entre les états $|X \rangle$ et $|Y \rangle$. L'évolution de l'état de la boîte en fonction du temps va donc être gouvernée par des oscillations de Rabi entre les états $Jz = \pm 1$ d'amplitude décroissante. La valeur de T_c reste inconnue ; une chose est certaine, si T_c était de l'ordre de la ps ou moins, le taux serait systématiquement nul, ce qui n'est pas le cas. Les courbes ci-dessous (4.6 et 4.7) résument l'évolution des composantes $\sigma+$ et $\sigma-$ de la luminescence en fonction du temps pour deux valeurs du temps de cohérence T_c différentes.

Les fonctions prises pour décrire cette luminescence sont :

$$I_{\sigma+} = \exp(-t/T_1) * (1 + \exp(-t/T_c^*) * \cos(\Delta Et/\hbar))/2$$

$$I_{\sigma-} = \exp(-t/T_1) * (1 - \exp(-t/T_c^*) * \cos(\Delta Et/\hbar))/2$$

Avec T_1 le temps de recombinaison radiatif (pris égal à $800ps$). La figure 4.8 donne le taux de polarisation calculé (après avoir intégré temporellement les intensités obtenues) en fonction du splitting. On constate que le taux peut être faiblement positif et qu'il est d'autant plus fort que la période de battement est grande pour un temps T_C donné.

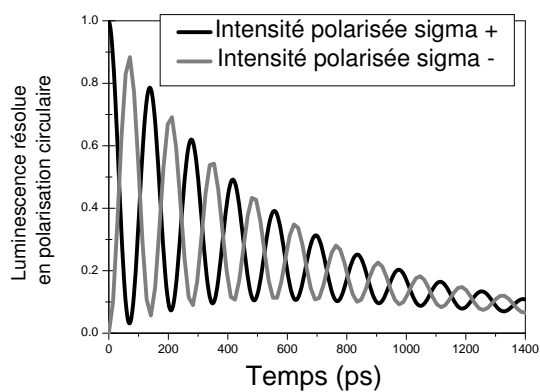


FIG. 4.6 – Evolution des composantes $\sigma+$ et $\sigma-$ de la luminescence en fonction du temps pour un état fondamental brillant d’une boîte qui est initialement dans l’état $J_z = +1$ et dont le splitting dû à l’anisotropie est de $30\mu eV$. $T_1 = 800ps$. $T_c = 1000ps$.

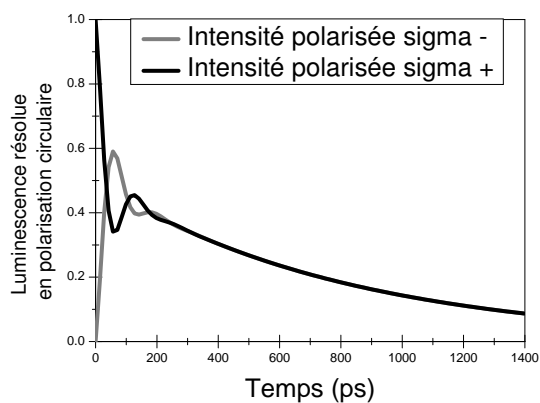


FIG. 4.7 – Même boîte avec $T_c = 50ps$

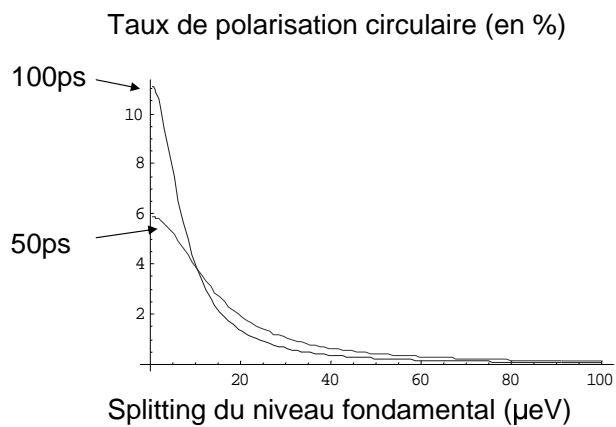


FIG. 4.8 – Evolution du taux de polarisation en fonction du splitting pour différentes valeurs de T_c^* et $T_1 = 800ps$

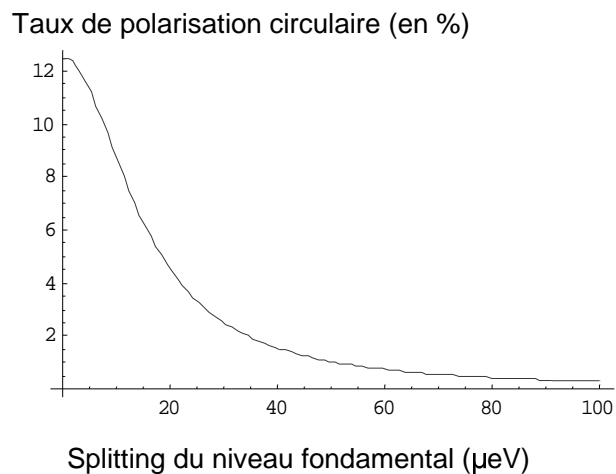


FIG. 4.9 – Même boîte avec $T_c^* = 50ps$ et $T_1 = 350ps$

Si on prend en compte maintenant l'effet tunnel quand la tension est très basse, celui-ci agit sur le temps de vie T_1 . La figure 4.9 montre que le principal effet de la réduction du temps T_1 est une augmentation du taux de polarisation quelque soit le splitting. Ce mécanisme pourrâit donc intervenir dans l'augmentation du taux de polarisation positif observé sur ensemble de boîtes quand la tension diminue (figure 4.1).

Trois facteurs agissent sur la valeur du taux : le splitting, le confinement et le temps de cohérence. Les mesures réalisées n'ont pas permis pour le moment de voir la corrélation attendue entre le splitting seul et la valeur du taux, pour des boîtes d'énergie du fondamental similaire, et donc de confinement similaire (ceci en supposant des temps de cohérence similaires).

Les raisonnements précédents supposent cependant que l'on a créé au départ un état $J_z = +1$. En pratique, le taux de polarisation initial sera limité par la probabilité de créer un tel état. De plus, le manque de corrélation observé est peut être dû au fait que deux boîtes ne sont pas excitées exactement de la même façon.

4.2.1.5 Polarisation du trion X^+

Un candidat très sérieux pour expliquer le taux de polarisation positif observé à basse tension est X^+ . Contrairement à X_0 , la présence de deux trous en configuration singulet sur le fondamental de la boîte supprime l'interaction d'échange et donc l'évolution décrite précédemment dans le cas de X_0 . On observe pour X^+ un taux positif d'environ 30% en excitant environ $70meV$ au dessus du fondamental. Là encore, une étude précise du taux de polarisation en fonction de l'énergie d'excitation, du confinement de l'état fondamental et de son splitting doit être menée.

L'observation d'un taux de polarisation positif s'explique ici par l'absorption directement sur le niveau fondamental d'un électron polarisé en spin. Si une boîte possède deux trous dans une configuration singulet et un électron de spin *down*, elle va naturellement luminescer $\sigma+$. La valeur de ce taux n'est cependant pas 100%. Nous discuterons cet aspect lors de la présentation des mesures résolues en temps.

4.2.1.6 Polarisation du trion X^-

X^- voit son taux de polarisation évoluer avec la tension appliquée. Pour les tensions faibles, lorsqu'il vient juste d'apparaître, son taux est nul ou faiblement positif pour une majorité de boîtes. Quand la tension augmente, il devient fortement positif puis il baisse lorsque la tension avoisine la tension d'apparition de X^{2-} . Commençons par comprendre ce qui se passe lorsque le trion apparaît.

Le bilan des énergies à fournir pour observer successivement les différentes raies d'une boîte a été présenté à la fin du chapitre 3. Lorsque le trion apparaît, l'état d'équilibre de la boîte correspond à un remplissage avec un électron (On ne tient pas compte du faible intervalle en tension sur lequel la boîte est en équilibre avec 0 électron). Cet électron est non polarisé.

Pour ce domaine de tension, on ne sait pas précisément quelle transition mixte intervient : $WL_e - S_h$ ou $WL_h - S_e$? On considérera donc les deux cas. Il faut par ailleurs noter que si on excitait directement le niveau fondamental grâce à une réplique à deux phonons, on devrait observer un taux de polarisation fort de +100%, sans évolution temporelle puisque le spin du trou ne pourrait plus évoluer (à moins qu'il n'existe un mécanisme de relaxation propre au trou qui ait un temps caractéristique de l'ordre de la nanoseconde. Nous verrons ultérieurement que ce n'est pas le cas). Des expériences de micro-PLE tenteront dans un avenir proche de repérer les transitions à deux phonons pour mettre en évidence ce régime d'excitation. Revenons pour le moment aux excitations des transitions mixtes :

- ◆ Si on injecte un électron directement sur le fondamental, et le trou dans la couche de mouillage, ce dernier peut perdre son spin avant de relaxer. Ce processus peut expliquer notre observation du taux de polarisation faiblement positif ou nul, suivant que le trou a perdu son orientation ou pas.
- ◆ Si, en revanche, on injecte un trou sur le niveau fondamental et un électron dans le continuum, celui-ci a une très forte probabilité de s'échapper par effet tunnel. La boîte ne possède donc qu'un exciton pendant tout le temps nécessaire à la capture du deuxième électron. L'orientation du spin du trou photo-injecté

peut donc évoluer du fait de l'interaction d'échange anisotrope pendant la durée de cette capture. Le second électron, quant à lui peut venir ou de l'excitation optique, ou du réservoir par un effet tunnel rendu plus probable par la présence du trou. Il n'est donc pas forcément orienté. On comprend donc que le taux de polarisation de X^- soit faible.

Pour modéliser simplement la valeur du taux obtenu lorsque le trou est injecté sur le niveau fondamental et l'électron dans la couche de mouillage, on suppose que le taux du trion est figé dès que le second électron arrive, ce qui revient à négliger les processus de relaxation intrinsèques du spin du trou. La polarisation P de X^- , moyennée dans le temps s'écrit alors :

$$\langle P \rangle = \int_0^\infty \left(\frac{\partial n_{X^-}}{\partial t} \right) * p_h(t) dt$$

où $\frac{\partial n_{X^-}}{\partial t}$ est le taux de création du trion thermalisé et $p_h(t)$ est la polarisation du spin du trou qui évolue via l'interaction d'échange anisotrope. Il nous faut donc modéliser $\frac{\partial n_{X^-}}{\partial t}$.

Pour ce faire, considérons deux états électroniques 1 et 2 (Voir graphe 4.10) : le premier représente l'état photocréé lors de l'excitation. Il est caractérisé par un taux d'occupation $n_1(t)$ tel que $n_1(t=0) = 1$. Cet état peut évoluer en se recombinant radiativement ou en relaxant vers un état intermédiaire 2, correspondant à un état de l'électron photo-injecté situé soit dans GaAs n^+ , après échappement par effet tunnel, soit dans la boîte (thermalisation sur un état excité de la boîte) ; cet état 2, représenté par un taux d'occupation $n_2(t)$, voit son évolution gouvernée par recombinaison radiative ou thermalisation de l'électron vers le fondamental de la boîte. L'évolution des ces deux états est donc décrite par les deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} &= \frac{-n_1}{\tau_1} + \frac{-n_1}{\tau_r} \\ \frac{dn_2}{dt} &= \frac{-n_2}{\tau_2} + \frac{-n_2}{\tau_r} + \frac{n_1}{\tau_1} \end{aligned}$$

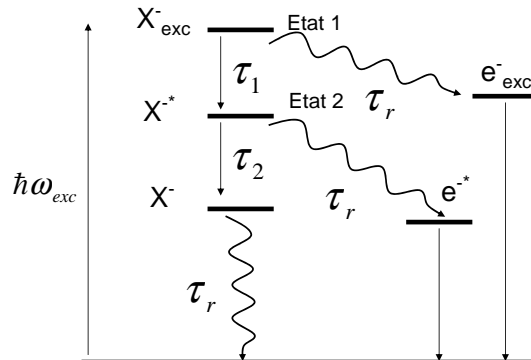


FIG. 4.10 – Modélisation du taux de création du trion thermalisé

τ_1 représente le temps caractéristique de thermalisation vers l'état 2, τ_2 le temps de capture d'un électron vers l'état fondamental du trion et τ_r le temps de recombinaison radiative, considéré comme identique pour chaque état. Comme $\tau_2 \ll \tau_r$, on négligera l'éventuelle évolution de l'état 2 par recombinaison radiative par la suite. Dans ces expressions, $\frac{n_2}{\tau_2}$ représente le taux de création des trions. Les deux cas de la figure 4.11 illustrent la dépendance temporelle de ce taux ainsi que l'évolution des intensités $\sigma+$ et $\sigma-$, pondérées par ce taux de création, de l'état fondamental excitonique (Ces intensités sont données par les équations page 129). Les deux cas diffèrent par la valeur de la période de Rabi (ou encore du "splitting" d'échange). On comprend que selon que la valeur de cette période est forte ou faible par rapport au temps τ_2 de capture du second électron, le taux de polarisation résultant, moyenné temporellement, sera fortement ou faiblement positif. On peut le vérifier en calculant ce taux. On moyenne pour cela temporellement les deux intensités pondérées. Le taux de polarisation résultant est représenté figure 4.12. Comme attendu, plus la période de Rabi est faible et plus le taux est faible. On remarque sur ce graphe que le taux de polarisation peut même devenir négatif pour les faibles période. Nous n'avons cependant pas mesuré un tel signe sur la plupart des trions observés, à une exception près, présentée figure 4.13.

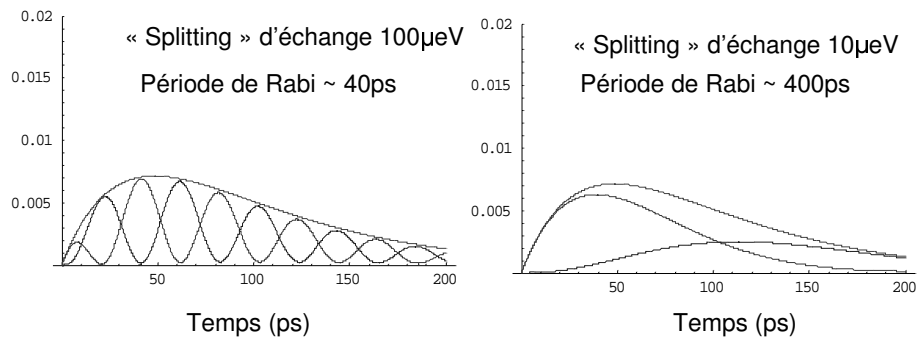


FIG. 4.11 – Evolution au cours du temps des intensités de luminescence $\sigma+$ et $\sigma-$ de l'état fondamental occupé par un exciton brillant (courbes du bas) pondérées par le taux de création du trion (enveloppe supérieure). $T_c^* = 1000ps$, $T_1 = 800ps = \tau_r = 800ps$, $\tau_1 = \tau_2 = 50ps$.

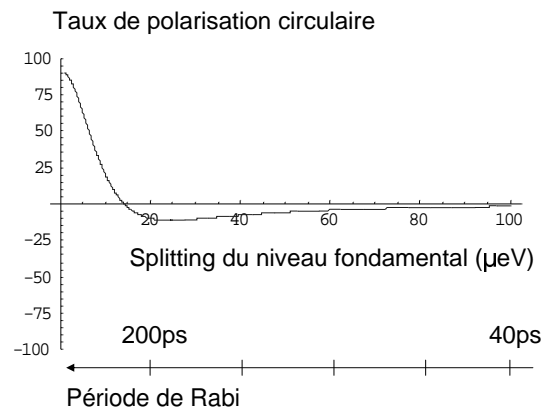


FIG. 4.12 – Evolution du taux de polarisation du trion pour la même boîte que précédemment avec $\tau_2 = 50ps$

Le taux dans ce cas est fortement négatif quand le trion apparaît, puis il augmente et atteint une valeur maximale positive d'environ +45% quand la tension augmente. Il faut cependant rester prudent sur l'origine de ce taux négatif. La boîte observée figure 4.13 a en effet été sélectionnée optiquement grâce à l'utilisation du masque métallique percé de trous ($1\mu m$ de diamètre). Par ailleurs, la valeur maximale positive du taux obtenue pour cette boîte à $+350mV$ est bien plus faible que celle approchant les +100% mesurée sur des boîtes observées sans masque optique. Ce taux négatif est donc peut être dû à l'influence du masque.

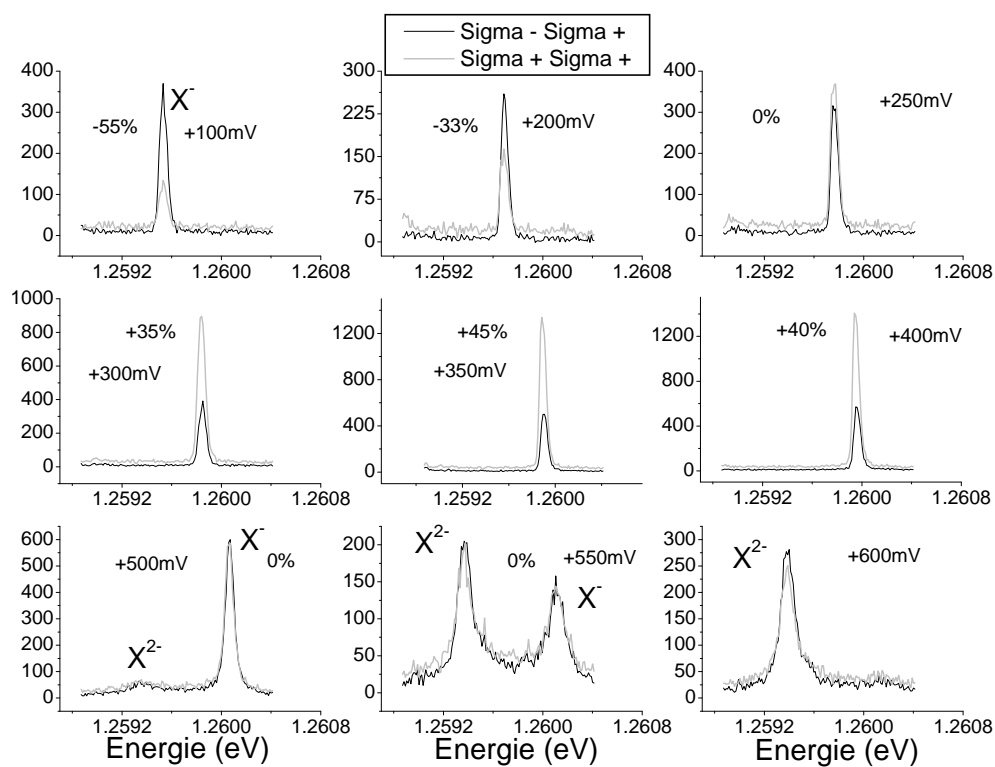


FIG. 4.13 – Evolution en fonction de la tension d'un trion. Energie d'excitation : 1.32eV . Puissance : 10^5Wcm^{-2}

On en vient à comprendre pourquoi le trion devient fortement polarisé positivement vers $400mV$ ou $500mV$ selon les boîtes. Pour de telles tensions, l'état d'équilibre de la boîte est maintenant de deux électrons. Ceci fait toute la différence avec le cas précédent.

Pour bien comprendre ce qui se passe, examinons avec quelles transitions on crée optiquement les porteurs : du fait de la présence de deux électrons dans la boîte, la transition mixte $WL_e - S_h$ devient possible en excitant entre 60 et $70meV$ au dessus, tandis que la transition $WL_h - S_e$ devient strictement interdite ; l'absorption ne peut donc se faire qu'en injectant un trou directement sur l'état fondamental, lequel trou a un spin orienté (état *up*).

Par ailleurs, l'état stable de la boîte est X^- et non X^{2-} . L'électron photoinjecté dans la couche de mouillage s'échappe donc par effet tunnel. On a donc créé initialement dans le système un trion X^- relaxé. Le taux de polarisation résultant est donc positif. Nous discuterons de la valeur forte de ce taux lors de la présentation des mesures résolues en temps.

4.2.1.7 Polarisation de X^{2-} et de $2X^-$

Quand la tension augmente à nouveau, l'électron photoinjecté a un temps d'échappement par effet tunnel de plus en plus long. Il peut relaxer sur l'état P et influencer le spin du trou du fait de l'interaction d'échange anisotrope avant de s'échapper par effet tunnel. On se retrouve dans une situation similaire à celle de l'exciton : le taux de polarisation de luminescence de X^- chute et celui de X^{2-} , quand l'électron sur l'état P ne s'échappe pas, sera nul voir faiblement positif.

En ce qui concerne $2X^-$, si l'électron présent sur l'état P a conservé son spin, la polarisation de la luminescence va sélectionner partiellement l'état final : à savoir si par exemple, le spin de l'électron sur le niveau P est *down*, la luminescence $\sigma-$ va donner naissance à la raie du trion brillant $T_{-1} \otimes S_v^\downarrow$ uniquement et la luminescence $\sigma+$ aux deux autres raies de la structure fine de $2X^-$. La figure 3.20 du chapitre 3 rend compte de cette propriété. Des études sont en cours pour montrer un tel effet.

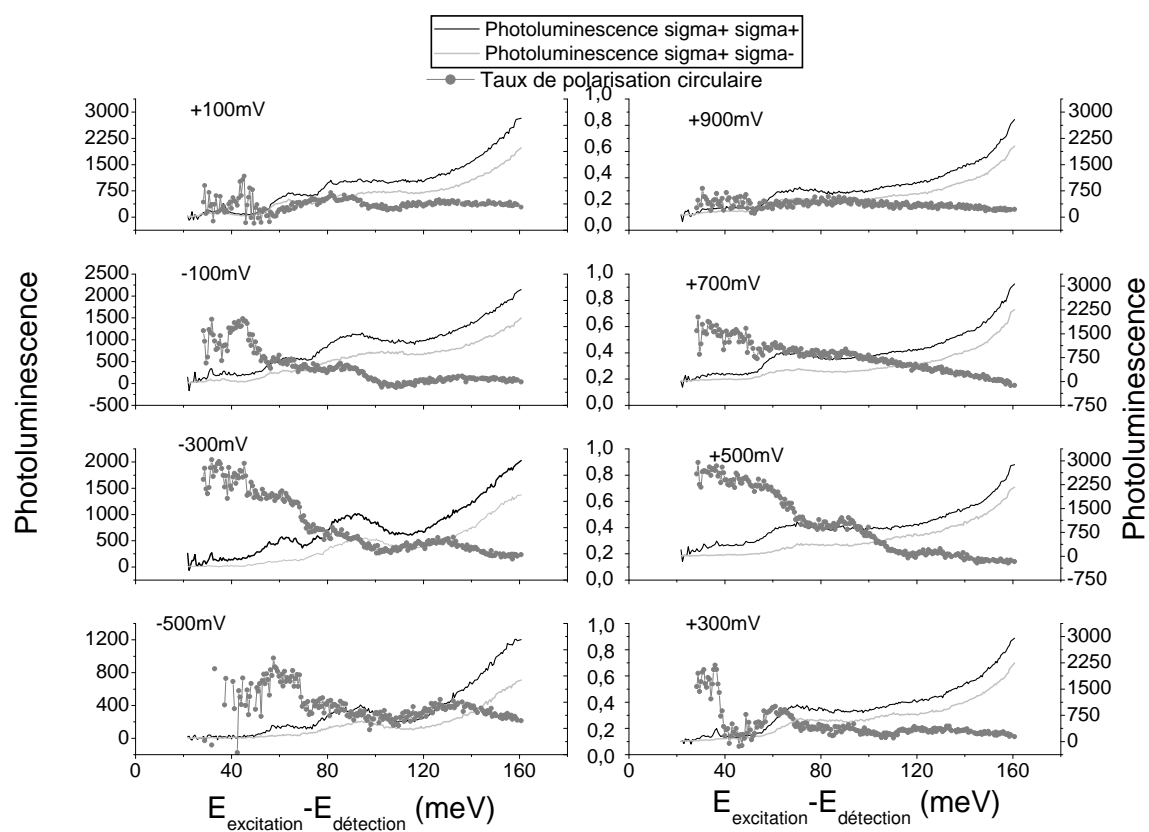


FIG. 4.14 – Spectres de PLE résolus en polarisation circulaire et obtenus pour différentes tensions. Echantillon $E1$, énergie de détection 1.265eV .

4.2.2 Etude de l'influence de l'énergie d'excitation

Nous avons vu dans le chapitre 2 que l'énergie d'excitation peut influencer les taux de polarisation observés. Des mesures de PLE s'imposent donc ; elles ont été réalisées tout d'abord sur ensemble de boîtes ; sur boîtes uniques, ces mesures présentent de grosses difficultés expérimentales liées à la faible quantité de signal que l'on récolte face aux signaux parasites (Il existe une luminescence résiduelle du cristal du laser qui est à l'énergie des boîtes).

La figure 4.14 présente un ensemble de spectres de PLE obtenu en détectant à $1.265eV$ pour différentes tensions. Ces spectres sont résolus en polarisation circulaire et normalisés par rapport à la puissance d'excitation et en retirant le signal parasite. Sur la même figure est représenté le taux de polarisation.

4.2.2.1 Interprétation des spectres de PLE

Commençons par nous intéresser à l'allure des spectres pour une tension donnée. On observe pour les tensions négatives l'existence de deux maxima d'absorption centrés à 60 et $90meV$ au dessus de l'énergie de détection (soit donc à $1.325eV$ et $1.355eV$). Ces deux maxima sont suivis d'une augmentation progressive de l'absorption lorsque l'énergie du laser se rapproche de l'énergie de la couche de mouillage.

- ◆ Il est légitime de penser que le premier correspond à l'apparition des transitions mixtes $WL_h - S_e$ ainsi que des répliques à deux phonons.
- ◆ Le second correspondrait aux transitions $WL_e - S_h$
- ◆ Une inconnue existe en revanche sur la position de la transition P-P. Suivant les boîtes étudiées dans la littérature, cette transition est située entre 50 et $100meV$ au dessus.

On remarque par ailleurs que les deux maxima évoluent lorsque la tension augmente. Entre 100 et $300mV$, ils disparaissent pour laisser la place à une marche d'escalier unique. Nous savons que ces tensions correspondent à l'apparition d'1 puis de 2

électrons à l'équilibre dans les boîtes. Comme nous l'avons discuté précédemment, l'ajout d'électrons doit déplacer les transitions mixtes $WL_h - S_e$ ($WL_e - S_h$) vers les basses (hautes) énergies. On peut donc supposer que cette disparition des deux maxima est due à un recouvrement des deux types de transitions.

4.2.2.2 Taux de polarisation

Qu'en est-il maintenant du comportement de la polarisation circulaire ? La première constatation est que ce taux est systématiquement positif, quelque soit l'énergie d'excitation ou la tension appliquée. Si on reprend le raisonnement effectué à la section 4.2.1.3 on sait qu'en excitant intraboîte, on doit toujours injecter un trou ou un électron polarisé puisque les transitions font intervenir systématiquement un état électronique ou/et de trous confiné. Par ailleurs, l'étude réalisée sur boîte unique nous a montré que quelque soit la tension, les raies luminescent en donnant une polarisation essentiellement positive ou nulle.

Reprenons maintenant l'évolution du taux de polarisation en fonction de la tension pour les différentes énergies d'excitation :

1. Lorsqu'on excite dans la région des maxima de luminescence, entre 60 et 90meV au dessus de l'énergie de détection, la polarisation connaît la même évolution avec la tension que celle observée sur la figure 4.1 ; elle est fortement positive vers $V = \pm 500mV$ et chute pour des tensions intermédiaires $V = 0mV$ et supérieures, $V > 500mV$. Son explication a été détaillée précédemment. On peut commenter cependant la différence de valeur du taux de polarisation observé entre le premier maximum et le second à basse tension. Pour le premier, on injecte directement sur le niveau fondamental un électron polarisé alors que pour le second, on injecte l'électron polarisé dans la couche de mouillage. Le taux de polarisation positif étant essentiellement dû au trion X^+ , on conçoit que le premier maximum soit plus fortement polarisé.

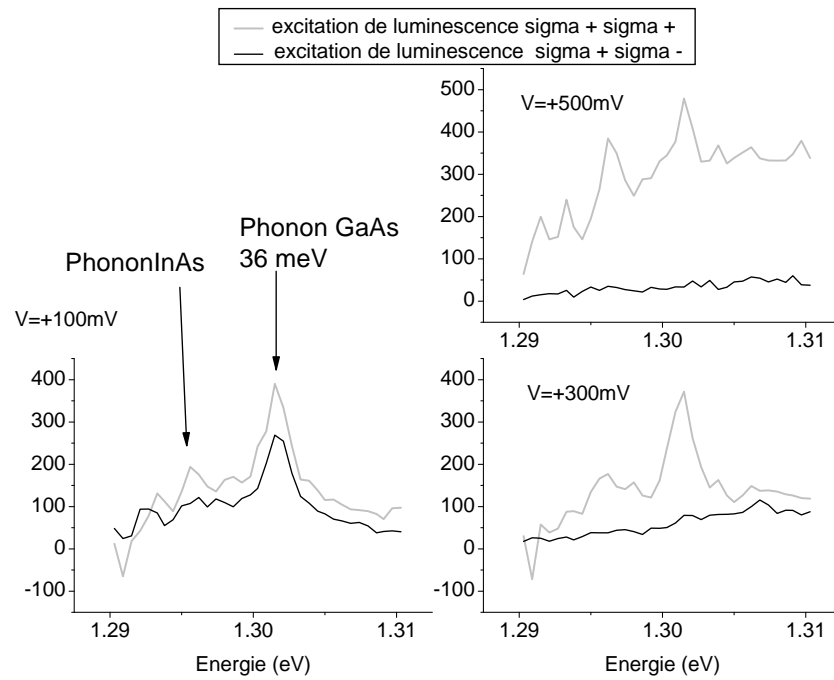


FIG. 4.15 – Résonance à un phonon. Agrandissement des spectres de PLE résolus en polarisation circulaire et obtenus pour différentes tensions. Energie de détection 1.265eV .

2. Pour des énergies comprises entre 30meV et 60meV au dessus du fondamental, on observe pour certaines tensions une absorption résiduelle qui dépend fortement de la polarisation. On ne peut l'attribuer qu'à une queue d'absorption des états mixtes. Pour $-300\text{mV} < V < -100\text{mV}$, la faible absorption fortement polarisée positivement est due aux états mixtes $WL_h - S_e$ et à la luminescence de X^+ . Lorsque la boîte se charge avec un électron, pour $V = +100\text{mV}$, cette absorption résiduelle n'est plus polarisée du fait de la luminescence prépondérante de X_0 et de X_- . L'absorption résiduelle est à nouveau polarisée pour $V = +500\text{mV}$ lorsque la transition $WL_e - S_h$ s'est suffisamment déplacée en énergie pour permettre l'absorption d'un trou polarisé sur le fondamental. Le taux est à nouveau très fort du fait de la création d'un trion X^- relaxé.

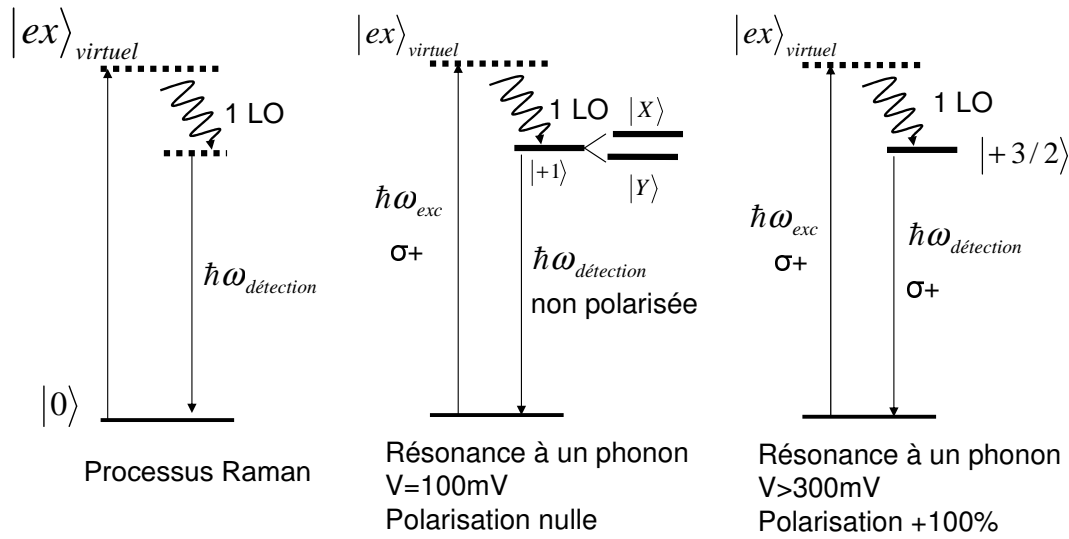


FIG. 4.16 – Processus Raman et résonance à un phonon.

3. Il reste à considérer certains pics d'absorption qui apparaissent à environ 36meV au dessus du niveau fondamental et qui sont donc des transitions assistées par un phonon LO. La figure 4.15 montre un agrandissement des courbes de PLE pour cette zone.

On observe une résonance située à 1.301eV dont la polarisation varie considérablement avec la tension. L'origine de cette résonance pourrait être attribuée (Voir figure 4.16) :

- ◆ soit à un processus de diffusion Raman qui fait intervenir un processus d'absorption à 1.301eV vers un premier état virtuel, suivi de l'émission d'un phonon LO (36meV pour GaAs) vers un second état virtuel et enfin d'une recombinaison à l'énergie de détection 1.265eV . Ce processus peut cependant être exclu car il ne met en jeu que des états virtuels qui ne peuvent expliquer le comportement de la polarisation de ce pic en fonction de la tension appliquée.
- ◆ soit un processus où l'on crée un état polaron ou une transition SP. Le caractère résonnant exactement à l'énergie d'un phonon LO rend ce processus peu probable.
- ◆ soit un processus résonant du second ordre, où l'absorption phonon-assistée

excite un état virtuel qui relaxe en quelques ps par émission d'un phonon LO vers l'état fondamental de l'exciton ou du trion dans la boîte. On retiendra dans la suite ce mécanisme qui nous paraît le plus probable pour expliquer le comportement de la polarisation de cette résonance en fonction de la tension. Pour $V = +100mV$, la résonance à un phonon est peu polarisée car la luminescence serait due à un exciton qui perd rapidement son orientation de spin. Pour $V > +300mV$, la réplique est fortement polarisée car la luminescence serait due à un trion dont un des électrons serait déjà présent avant l'absorption. Ce dernier aurait nécessairement un spin up pour permettre la formation d'un trion $|+3/2\rangle$ par absorption d'un photon polarisé $\sigma+$. Ce trion gardant sa polarisation durant son temps de vie radiatif, la polarisation est fortement positive.

4.3 Mesures résolues en temps

Des mesures de photoluminescence résolues en temps et en polarisation ont été réalisées sur l'échantillon $E1$, au LPN avec l'équipement de B. Sermage, par B. Eble et O. Krebs, en parallèle à l'étude des boîtes uniques qui vient d'être présentée. Leur objectif était d'apporter un éclairage complémentaire sur la dynamique de la polarisation dans ces structures Schottky, en particulier afin de vérifier l'évolution du temps de relaxation du spin avec la tension appliquée.

Il s'agit d'une mesure classique de macro-luminescence, où l'excitation (ici à $1.34eV$ et de puissance $25mWcm^{-2}$) est délivrée par un laser Ti:Saphir pulsé en mode picoseconde, et où la détection est effectuée après passage par un spectromètre par une caméra à balayage de fente synchronisée sur les impulsions picosecondes du laser. Compte tenu, du faible signal collecté en excitation intraboîte, la totalité de l'ouverture angulaire du spectromètre était utilisée au prix d'une faible résolution temporelle limitée à $\sim 60ps$. En outre, la forte diffusion du laser masque la luminescence les 100 premières ps secondes qui suivent l'excitation.

Les principaux résultats des courbes de luminescence et des taux de polarisation obtenus sont présentés sur la figure 4.17 et les suivantes.

On peut distinguer plusieurs régimes selon la tension appliquée :

1. Pour les tensions très négatives, $V < -300mV$, on constate que la photoluminescence chute sur un temps caractéristique (moins de $500ps$) inférieur au temps de recombinaison radiatif. On retrouve ici qu'aux champs forts, l'effet tunnel limite le temps de vie. Le taux de polarisation, fortement positif initialement, chute sur un temps caractéristique de $700ps$. Comme on sait que la luminescence pour cette gamme de tension est due à X^+ , on retrouve une valeur de la polarisation intégrée temporellement pour la raie X^+ de 20% à 30%.

Pour cette gamme de tension, on peut légitimement considérer qu'au moment de l'absorption de l'électron sur le niveau fondamental, la boîte qui contribue au signal de photoluminescence contient déjà deux trous. En effet, dans le cas contraire, on devrait observer sur les spectres de luminescence de boîtes uniques à ces tensions la raie de l'exciton en plus de celle de X^+ , ce qui n'est jamais le cas. La relaxation de la polarisation observée pour cette tension est dès lors due aux processus de relaxation du spin d'un ensemble d'électrons (cf chapitre 1). Le temps caractéristique correspondant serait alors inférieur à la nanoseconde. Si on suppose que le mécanisme principal de relaxation est dû au couplage hyperfin, le temps mesuré correspondrait au temps T_{Δ} calculé par I. A. Merkulov (voir paragraphe 1.3.3.3 au premier chapitre). Ce temps a été estimé entre $100ps$ et $1ns$, ce qui est en accord avec notre mesure. Il faut cependant rester prudent quant à cette interprétation : on ne peut pas en effet affirmer en toute certitude que lors de la formation de X^+ , deux trous sont présents sur le niveau fondamental quand l'électron est photoinjecté. Si seul un trou est présent, l'interaction d'échange anisotrope peut agir sur l'exciton formé avant la capture du second trou, provoquant une chute du taux de polarisation. Des mesures ultérieures utilisant un contrôle électrique (et non optique) du nombre de trous présents devraient permettre de conclure.

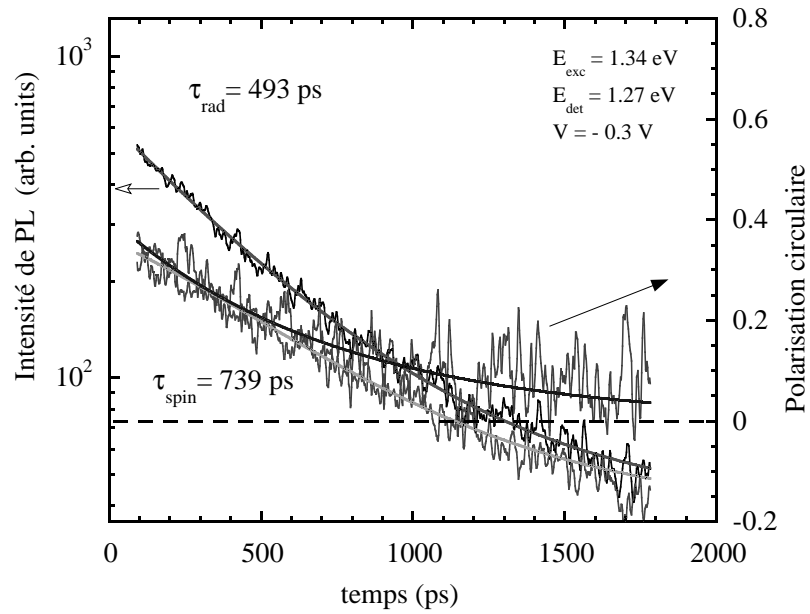


FIG. 4.17 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de -300 mV . Emission préférentielle de X^+ .

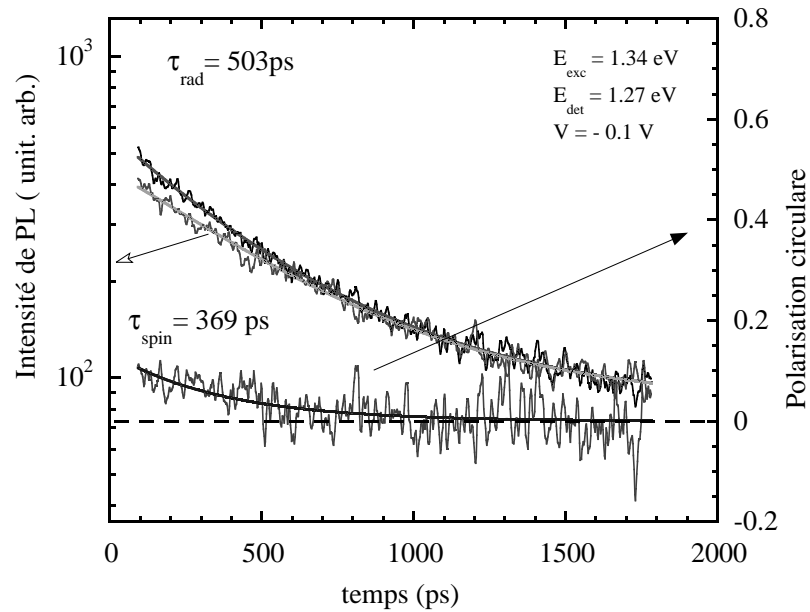


FIG. 4.18 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de -100 mV . Emission préférentielle de X_0 .

2. Pour $V = -100mV$, on observe un radical changement du comportement temporel du taux de polarisation qui devient très faible dès la première centaine de picosecondes. Nous savons que pour cette tension, la photoluminescence provient essentiellement d'excitons neutres. Ce comportement confirme bien que l'exciton perd toute information sur les spins photo-injectés. On peut par ailleurs noter qu'à partir de $-100mV$, une modélisation des courbes de luminescence par une décroissance mono-exponentielle est insuffisante. Un deuxième temps est nécessaire pour décrire la luminescence aux temps longs. Cette recombinaison radiative tardive pourrait être due aux états noirs de l'exciton.
3. Entre $V = 100mV$ et $V = 500mV$, la polarisation moyennée dans le temps passe de zéro à environ 50%. Cette évolution est due à la création progressive dans toutes les boîtes d'un trion X^- de moment $|+3/2\rangle$ sur le niveau fondamental. Pour $V = 500mV$, cette polarisation décroît au début de la recombinaison radiative puis garde une valeur quasi constante forte au cours du temps. La décroissance initiale peut s'interpréter comme étant due à la luminescence pour certaines boîtes de X^{2-} ou du trion X^- dépolarisé, tandis que la valeur finale quasi constante de la polarisation illustre le comportement temporel du trion polarisé et nous prouve donc que le spin du trou ne perd pas son orientation pendant toute la durée de la recombinaison radiative. Un fit de la décroissance temporelle de cette seconde partie de courbe permet d'estimer que le temps de relaxation du spin d'un ensemble de trous est supérieur à $20ns$.
4. A partir de $500mV$, la polarisation chute à nouveau au cours du temps. Si on suppose que la luminescence est due essentiellement à X^{2-} , la décroissance de la polarisation résulte des battements quantiques produits par l'interaction d'échange anisotrope entre l'électron P et le trou.

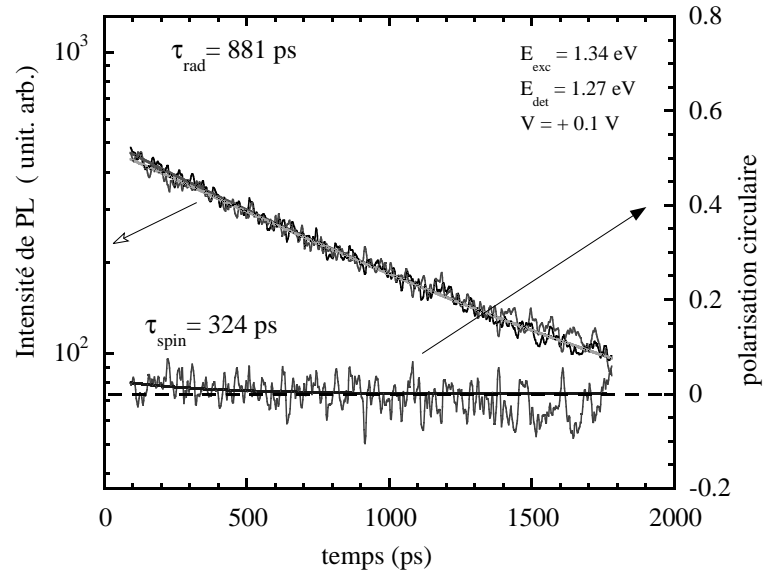


FIG. 4.19 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de $+100 \text{ mV}$. Emission préférentielle de X_0 et de X^- lorsque la boîte est en équilibre avec 1 électron.

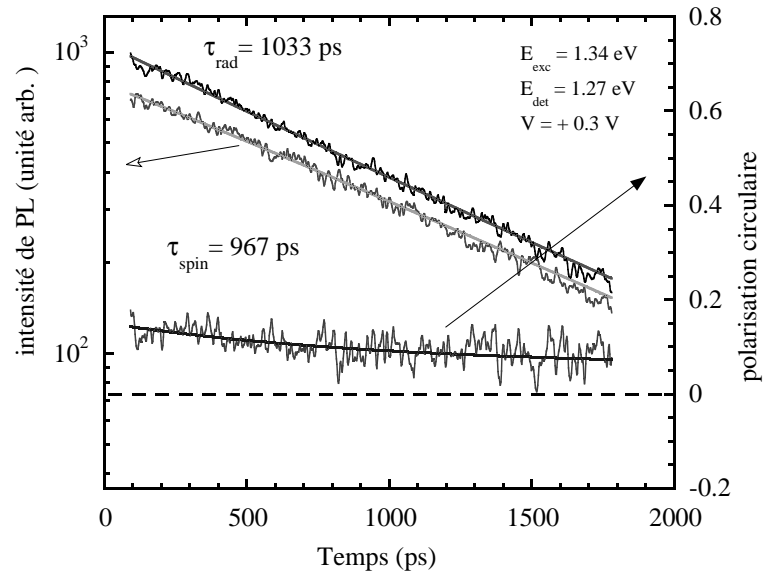


FIG. 4.20 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de $+300 \text{ mV}$. Emission préférentielle de X^- lorsque la boîte est en équilibre avec 1 ou 2 électrons.

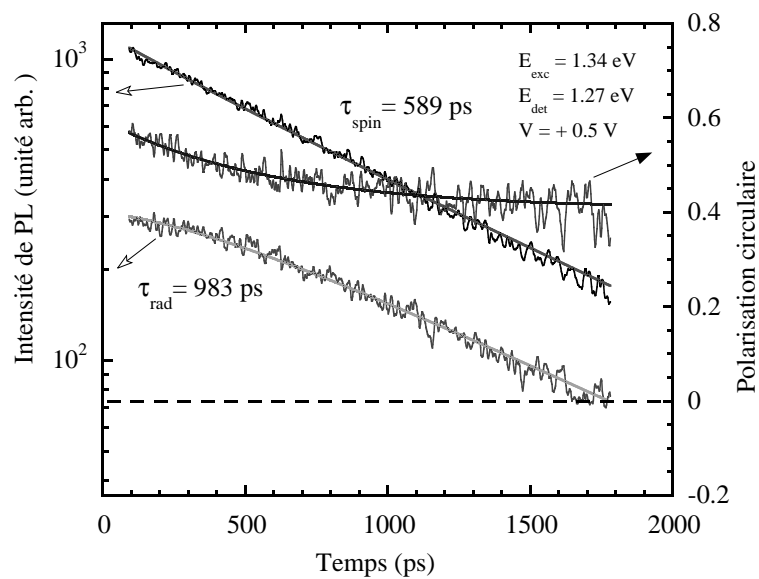


FIG. 4.21 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de $+500$ mV. Emission préférentielle de X^- lorsque la boîte est en équilibre avec 2 électrons.

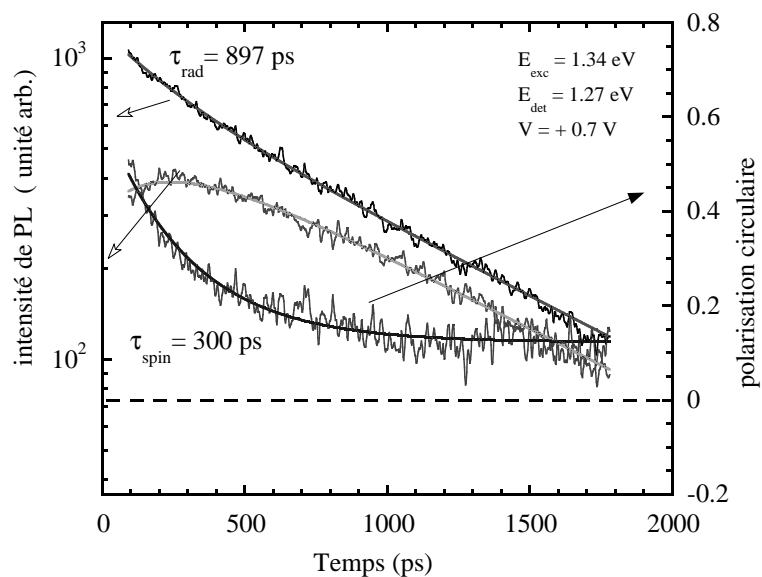


FIG. 4.22 – Photoluminescence résolue en temps de $E1$ pour une tension de $+700$ mV. Emission préférentielle de X^{2-} .

4.4 Conclusion

L'étude de boîtes à contrôle de la charge nous a permis d'avancer dans notre compréhension des mécanismes de relaxation du spin.

- ◆ L'observation d'une polarisation de luminescence quasi nulle pour les raies X_0 et X^{2-} est une nouvelle preuve expérimentale de l'influence déterminante de l'interaction d'échange anisotrope sur la polarisation.
- ◆ L'étude de la polarisation des trions X^- nous a permis d'estimer le temps de relaxation de spin d'un ensemble de trous. Celui-ci est supérieur à $20ns$. L'étude de X^+ suggère quant à elle que le temps de relaxation d'un ensemble d'électrons est supérieur à $700ps$. Ce résultat est cependant à confirmer.
- ◆ L'expérience réalisée au chapitre 2 d'orientation optique du spin d'un électron résident par excitation dans la couche de mouillage n'a pu être reproduite jusqu'à présent. Il faudrait pour cela disposer ou bien de boîtes d'énergie du niveau fondamental plus basse ou bien d'une structure possédant une barrière tunnel plus épaisse, ce qui limiterait ainsi l'échappement de l'électron photoinjecté. Une dernière possibilité consisterait à réaliser une nouvelle structure de boîtes à contrôle de la charge, similaire à la précédente mais dont l'électrode arrière serait dopée p. Cette structure permettrait de contrôler le nombre de trous injectés dans la boîte électriquement. De même que pour la structure dopée n, un électron seul pourrait constituer l'état d'équilibre de la boîte pour une certaine valeur de la tension et de la puissance d'excitation appliquées. L'excitation polarisée circulairement dans la couche de mouillage devrait alors nous permettre d'observer un taux de polarisation circulaire négatif.

Ce type de structure devrait permettre également d'observer la polarisation résolue temporellement du trion X^+ et de confirmer la valeur du temps de relaxation d'un ensemble de spins électroniques. Si cette mesure montre que la polarisation d'un ensemble de spins électroniques décroît en un temps inférieur

à la nanoseconde et atteint une valeur finale de 33%, nous aurons la preuve de l'action prépondérante du couplage hyperfin dans la relaxation d'un ensemble de spins d'électrons.

Conclusion

Le spin électronique, en tant que système quantique à 2 niveaux, pourrait constituer l'élément de base (*qubit*) d'un futur ordinateur quantique. Son temps de cohérence doit cependant être suffisamment long pour permettre son utilisation lors de calculs quantiques. L'utilisation de boîtes quantiques semblent dans cette optique tout à fait encourageante ; le confinement des électrons selon les trois directions de l'espace devrait en effet allonger le temps de relaxation du spin en supprimant la plupart des mécanismes qui le font relaxer habituellement dans les semi-conducteurs $3D$.

Pendant ce travail de thèse, nous avons cherché à mesurer le temps de relaxation du spin des électrons et des trous lourds confinés en nous intéressant à la polarisation circulaire de luminescence des excitons chargés X^- et X^+ .

- ◆ Cette étude a été menée initialement en travaillant sur un ensemble de boîtes dopées n^+ ; elle a permis tout d'abord de révéler l'importance du rôle de l'interaction d'échange anisotrope dans les processus de relaxation des spins dans les boîtes vides ou chargées. Cette étude a ensuite conduit à la mesure d'un temps de relaxation du spin de l'électron supérieur à $10ns$.
- ◆ Le travail s'est ensuite poursuivi en étudiant la polarisation de luminescence de raies d'excitons chargées de boîtes quantiques uniques. Ceci a été rendu possible par la réalisation de systèmes permettant un contrôle électrique du nombre d'électrons résidents dans chaque boîte.
- ★ L'étude de X^- a ainsi permis de dégager un temps de relaxation du spin du trou supérieur à une vingtaine de nanosecondes ;

- ★ Celle de X^+ suggère que la polarisation initiale créée par l'orientation optique d'un ensemble de spins électroniques décroît en un temps caractéristique inférieur à la nanoseconde. Ce résultat semble confirmer les prédictions théoriques de I. A. Merkulov, qui estime que le mécanisme responsable de cette relaxation est l'interaction hyperfine qui couple le système désordonné de spins nucléaires au système de spins électroniques.

La réalisation d'un système permettant cette fois un contrôle électrique du nombre de trous résidents dans chaque boîte devrait permettre de confirmer le rôle du couplage hyperfin. On pourrait en effet alors comparer le comportement temporel des deux trions X^+ et X^- pour les deux systèmes de boîtes respectivement dopées p et n. Si la polarisation de X^+ dans les systèmes dopés p décroît beaucoup plus vite que celle de X^- dans les systèmes dopés n, ce serait le signe qu'effectivement un mécanisme existe et agit seulement sur le spin électronique. Cette observation renforcerait l'hypothèse du couplage hyperfin car ce dernier n'agit pas sur les spins des trous.

Les mesures réalisées sur boîte unique ne permettent pas en revanche de déterminer le temps de relaxation d'un seul spin électronique. Cette relaxation serait gouvernée d'après I. A. Merkulov par les fluctuations temporelles du champ nucléaire. Seule une mesure du type pompe sonde, comme celle présentée au chapitre 2 mais réalisée sur boîte unique, permettrait de conclure. Il nous faut pour cela disposer de boîtes dont l'état P est suffisamment stable (Voir chapitre 4) et donc travailler ou bien sur des structures dont la largeur de la barrière tunnel est plus épaisse ou bien sur des boîtes moins confinantes de telle sorte à abaisser leurs niveaux d'énergie.

Enfin, l'étude de l'influence d'un champ magnétique sur la polarisation de X^+ devrait par l'observation d'une polarisation plus forte confirmer l'influence de l'interaction hyperfine.

Bibliographie

- [1] Peter Y. Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of Semiconductors, Physics and materials properties*. Springer, 1994.
- [2] Gerald Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1988.
- [3] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer, 1997.
- [4] J. M. Luttinger. Quantum theory of cyclotron resonance in semiconductors : General theory. *Physical Review*, 102, 1956.
- [5] A. Twardowski and C. Hermann et al. Variational calculation of polarization of quantum well photoluminescence. *Phys. Rev. B*, 35, 1987.
- [6] Angela Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*. Thèse de l'Université Paris 6, 2002.
- [7] Sophie Hameau. *Systèmes d'électrons dans les nanostructures semi-conductrices à confinement quantique dans 2 ou 3 directions*. Thèse de l'Université Paris 6, 2000.
- [8] Jean-Noël Isaia. *Niveaux électroniques et interaction électron-phonons dans les boîtes quantiques InAs/GaAs*. Thèse de l'Université Paris 6, 2003.
- [9] Philippe Lelong. *Etats multi-électroniques fortement corrélés de boîtes quantiques nanoscopiques*. Thèse de l'Université Paris 6, 1997.
- [10] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, and A. Forchel. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled in(ga)as/(al)gaas quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65, 2002.

- [11] P. Pfeffer and W. Zawadzki. Conduction electrons in gaas : Five-level k.p theory and polaron effects. *Phys. Rev. B*, 41, 1990.
- [12] F. Meier and B. Zakharchenya. *Optical orientation*.
- [13] Y. Ohno, R. Terauchi, and T. Adachi et al. Spin relaxation in gaas(110) quantum wells. *Phys. Rev. L*, 83, 1999.
- [14] P. Le Jeune, X. Marie, and T. Amand et al. Hole spin relaxation and exciton formation in bulk gaas. *24th ICPS World Scientific 1255.pdf*, 1999.
- [15] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov. Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 61, 2000.
- [16] A. V. Khaetskii and Yuli V. Nazarov. Spin-flip transitions between zeeman sublevels in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 64, 2001.
- [17] I. A. Merkulov, Al. L. Efros, and M. Rosen. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. B*, 65, 2002.
- [18] Sébastien Cortez. *Brisure de symétrie dans les hétérostructures de semiconducteurs III – V : de l'anisotropie optique des puits à l'orientation de spin dans les boîtes quantiques*. Thèse de l'Université Paris 6, 2001.
- [19] E. L. Ivchenko and G.E. Pikus. *Superlattices and Other Heterostructures*. Springer-Verlag, Berlin, 1984.
- [20] J. Barrau, Gerard Bacquet, and F. Hassen et al. Luminescence polarization and hole spin relaxation in quantum wells. *Journal of supperlattice and microstructures*, 14, 1993.
- [21] B. Urbaszek, R. J. Warburton, and K. Karrai et al. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled in(ga)as/(al)gaas quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 90, 2003.
- [22] T. Amand, B. Urbaszek, and M. Sénès et al. Spin dynamics and exchange interaction in quantum dots : from neutral to charged excitons. *International Symposium on Photonics and Spintronics in Semiconductor Nanostructures in Kyoto*, <http://ipc.kit.ac.jp/takaghra/amand.pdf>, 2003.

- [23] B. Urbaszek, E. J. McGhee, and M. Kruger et al. Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots : Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering. *Phys. Rev. B*, 69, 2004.
- [24] G. Bester, S. Nair, and A. Zunger. Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $in_{1-x}ga_xas/gaas$ quantum dots. *Phys. Rev. B*, 67, 2003.
- [25] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. Continuous absorption background and decoherence in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 89, 2002.
- [26] G. Medeiros-Ribeiro, D. Leonard, and P. M. Petroff. Electron and hole energy levels in *inas* self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 66, 1995.
- [27] S. M. Sze. *Physics of Semiconductor Devices*. John Wiley and Sons.
- [28] G. Medeiros-Ribeiro, F. G. Pikus, P. M. Petroff, and A. L. Efros. Single-electron charging and coulomb interaction in *inas* self-assembled quantum dot array. *Phys. Rev. B*, 55, 1997.
- [29] R. J. Luyken, A. Lorke, and A. O. Govorov et al. The dynamics of tunneling into self-assembled *inas* dots. *Appl. Phys. Lett.*, 74, 1999.
- [30] C. M. A. Kapteyn, M. Lion, and R. Heitz et al. Hole and electron emission from *inas* quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 76, 2000.
- [31] P. N. Brunkov, A. Patane, and A. Levin et al. Photocurrent and capacitance spectroscopy of schottky barrier structures incorporating *inas/gaas* quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65, 2002.
- [32] P. W. Fry, J. J. Finley, and L. R. Wilson et al. Electric-field-dependent carrier capture and escape in self-assembled *in/as/gaas* quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 77, 2000.
- [33] R. Oulton, J. J. Finley, A. D. Ashmore, and I. S. Gregory et al. Manipulation of the homogeneous linewidth of an individual *in(ga)as* quantum dot. *Phys. Rev. B*, 66, 2002.

- [34] M. C. Bödefeld, R. J. Warburton, and K. Karrai et al. Storage of electrons and holes in self-assembled InAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 74, 1999.
- [35] P. W. Fry, I. E. Itskevich, S. R. Parnell, and J. J. Finley et al. Photocurrent spectroscopy of InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, 62, 2000.
- [36] J. M. Smith, P. A. Dalgarno, and B. Urbaszek et al. Carrier storage and capture dynamics in quantum-dot heterostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 82, 2003.
- [37] J. J. Finley, P. W. Fry, and A. D. Ashmore et al. Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot. *Phys. Rev. B*, 63, 2001.
- [38] A. Hundt, T. Flissikowski, I. A. Akimov and F. Henneberger. Single-hole spin relaxation in a quantum dot. *Phys. Rev. B*, 68, 2003.
- [39] G. Bester and A. Zunger. Compositional and size dependent spectroscopic shifts in charged self-assembled $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ quantum dots. *Phys. Rev. B*, 68, 2003.
- [40] Lucien Besombes. *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semi-conducteurs II – VI*. Thèse de l'Université Joseph Fourier Grenoble 1, 2001.
- [41] Y. Toda, O. Moriwaki, and M. Nishioka et al. Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states. *Phys. Rev. Lett.*, 82, 1999.

Abstract

The electronic spin in semiconductors is currently the object of numerous investigations. As a two level quantum system, it could form the basis of a future quantum computer (a quantum bit). Its performance would be limited by the decoherence of the up and down states superposition of the quantum bit. The challenge is thus to build a system in which the coherence time would be long enough to allow quantum information processing. In this context, quantum dots charged with only one electron are promising candidates. In these nanoscale systems, the energy levels are discrete, therefore most spin relaxation mechanisms are suppressed. This PhD work concerns the determination of the spin relaxation time in quantum dots.

Keywords :

Semiconductors

Spin relaxation

Quantum information

Charged quantum dots

Trion

Optical orientation

Exchange interaction

Résumé

Le spin électronique dans les semi-conducteurs fait actuellement l'objet de nombreuses investigations. Il pourrait en effet constituer, en tant que système quantique à 2 niveaux, l'élément de base d'un futur ordinateur quantique : un quantum-bit. Une des limites physiques d'un tel ordinateur provient en premier lieu de la décohérence de la superposition des états up et down de ce quantum-bit. La problématique est donc d'obtenir un système dans lequel ce temps de cohérence soit suffisamment long pour permettre de futures manipulations quantiques. Dans ce contexte, les boîtes quantiques semi-conductrices chargées avec un seul électron se présentent comme des candidats prometteurs. Ces systèmes, de part leur dimensions nanométriques, ont en effet la propriété de posséder une structure électronique discrétisée, ce qui supprime les principaux mécanismes responsables de la relaxation du spin. Ce travail de thèse tend donc à déterminer le temps de relaxation du spin dans une boîte.

Mots clefs :

Semi-conducteurs

Relaxation du spin

Information quantique

Boîtes quantiques chargées

Trion

Orientation optique

Interaction d'échange