



**HAL**  
open science

# Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs.

Ivan Favero

► **To cite this version:**

Ivan Favero. Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs.. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005. Français. NNT : . tel-00011133

**HAL Id: tel-00011133**

**<https://theses.hal.science/tel-00011133>**

Submitted on 30 Nov 2005

**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.

ECOLE NORMALE SUPERIEURE  
Département de Physique



THESE de DOCTORAT de L'UNIVERSITE PARIS VI

Spécialité : Physique des Solides

présentée par

Ivan FAVERO

**Décohérence, symétries et relaxation de spin  
dans les boîtes quantiques de semiconducteurs**

Soutenue le 21 octobre 2005 devant le jury composé de :

Philippe Roussignol	(Directeur de thèse)
Xavier Marie	(Rapporteur)
Carlo Sirtori	(Rapporteur)
Maria Chamarro	(Examineur)
Jean-Yves Marzin	(Examineur)
Jean-Michel Gérard	(Membre invité)
Robson Ferreira	(Membre invité)
Guillaume Cassabois	(Membre invité)

**Laboratoire Pierre Aigrain  
Ecole Normale Supérieure - 24 rue Lhomond - 75005 Paris**



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Les boîtes quantiques</b>	<b>23</b>
1.1	Histoire des boîtes quantiques . . . . .	23
1.2	La croissance auto-organisée . . . . .	24
1.3	Les états d'une boîte quantique . . . . .	25
1.3.1	Allure de la densité d'états . . . . .	25
1.3.2	Calcul des états quantiques d'une boîte . . . . .	26
1.4	L'interaction avec la lumière . . . . .	32
1.4.1	Les transitions optiques . . . . .	32
1.4.2	Le continuum des états mixtes . . . . .	33
1.4.3	La photoluminescence . . . . .	34
1.4.4	L'atome à deux niveaux . . . . .	35
1.4.5	Conclusion . . . . .	37
<b>2</b>	<b>Aspects expérimentaux</b>	<b>39</b>
2.1	Montages expérimentaux utilisés . . . . .	39
2.1.1	Montage de macro-photoluminescence . . . . .	39
2.1.2	Micro-photoluminescence sur boîte quantique unique . . . . .	43
2.1.3	Micro-photoluminescence résolue dans le temps . . . . .	54
2.2	Description des échantillons utilisés . . . . .	54
<b>3</b>	<b>Décohérence à basse température</b>	<b>59</b>
3.1	Les ailes de phonons acoustiques . . . . .	60
3.1.1	Déviations par rapport à un spectre lorentzien . . . . .	60

3.1.2	Résultats expérimentaux . . . . .	62
3.1.3	Le modèle de Huang-Rhys . . . . .	62
3.2	Elargissement de la raie à zéro phonon . . . . .	69
3.2.1	Mécanismes d'élargissement dans un puits quantique . . . . .	70
3.2.2	Différents résultats dans différents groupes . . . . .	71
3.2.3	Transitions virtuelles et déphasage pur . . . . .	73
3.2.4	Temps de vie des phonons acoustiques . . . . .	76
3.3	L'environnement fluctuant . . . . .	78
3.3.1	Introduction . . . . .	78
3.3.2	Etude expérimentale de l'environnement fluctuant . . . . .	80
3.3.3	Modélisation de l'environnement fluctuant . . . . .	84
3.3.4	Discussion . . . . .	86
3.3.5	"Métastabilité" de l'environnement . . . . .	89
3.4	Conclusion . . . . .	90
<b>4</b>	<b>Structure fine de l'exciton et anisotropie optique</b>	<b>93</b>
4.1	Structure fine d'une zone dense à une zone diluée . . . . .	95
4.1.1	Approche expérimentale de la structure fine . . . . .	95
4.1.2	Zone dense et expériences sur un ensemble de boîtes . . . . .	96
4.1.3	Boîtes uniques en zone dense et en zone diluée . . . . .	98
4.2	Modélisation de la structure fine . . . . .	115
4.2.1	Structure de bande effective d'un composé III-V . . . . .	116
4.2.2	Le rôle des contraintes . . . . .	118
4.2.3	Situation dans une boîte quantique . . . . .	120
4.2.4	Interaction coulombienne directe, d'échange et échange ef- fectif électron-trou . . . . .	123
4.2.5	Origine de la structure fine . . . . .	130
4.2.6	Modélisation de l'anisotropie optique et comparaison avec l'expérience . . . . .	139
4.2.7	Evolution du splitting d'échange . . . . .	145
4.2.8	Conclusion . . . . .	147

4.3	Etude sous champ magnétique d'une boîte très anisotrope . . . . .	147
4.3.1	Décalage diamagnétique et effet Zeeman . . . . .	148
4.3.2	Analyse en polarisation . . . . .	152
4.4	Conclusion . . . . .	154
<b>5</b>	<b>Dynamique du spin de l'exciton</b>	<b>157</b>
5.1	Gel de la relaxation de spin dans une boîte quantique . . . . .	159
5.1.1	Mécanismes de relaxation dans le massif . . . . .	159
5.1.2	Situation dans une boîte quantique . . . . .	162
5.2	Dynamique du spin excitonique et anisotropie optique . . . . .	164
5.2.1	Etude en température d'un ensemble de boîtes sous excitation non-résonante . . . . .	164
5.2.2	Relaxation du spin excitonique et polarisation du signal de photoluminescence . . . . .	166
5.2.3	Evolution en température de la relaxation du spin de l'exciton	170
5.3	Etude de la relaxation du spin sur boîte unique . . . . .	171
5.3.1	Relaxation efficace du spin excitonique sur des boîtes uniques à 10 K . . . . .	171
5.3.2	Expériences résolues dans le temps à 5 K . . . . .	172
5.3.3	Expériences résolues dans le temps en fonction de la température . . . . .	174
5.4	Excitation quasi-résonante d'un ensemble de boîtes . . . . .	179
5.4.1	Orientation optique sous excitation quasi-résonante . . . . .	180
5.4.2	Etude à 10 K en fonction de l'énergie d'excitation . . . . .	185
5.4.3	Etude en température . . . . .	199
5.5	Conclusions . . . . .	205



# Table des figures

1.1.1	<i>Un bâti d'épitaxie par jets moléculaires (MBE).</i> . . . . .	24
1.2.2	<i>Echantillon épitaxié de boîtes quantiques.</i> . . . . .	25
1.3.1	<i>Allure de la densité d'états d'une boîte quantique dans une image à une particule.</i> . . . . .	26
1.3.2	<i>Géométrie d'une boîte quantique modèle.</i> . . . . .	28
1.3.3	<i>Energie des premiers niveaux électroniques dans une boîte conique à symétrie circulaire de hauteur constante 1.5 nm en fonction du rayon de la boîte.</i> . . . . .	29
1.3.4	<i>Allure des fonctions d'onde d'électrons et de trous calculées par l'approche pseudo-potential dans des boîtes quantiques de différentes géométries [45].</i> . . . . .	31
1.4.5	<i>Spectre d'absorption théorique d'une boîte quantique unique.</i> . . . .	34
1.4.6	<i>Les transitions optiques dans une boîte quantique et le principe de la photoluminescence sous excitation non-résonante.</i> . . . . .	35
2.1.1	<i>Montage de spectroscopie de macrophotoluminescence.</i> . . . . .	40
2.1.2	<i>Spectre de photoluminescence non-résonante à 10K sur un ensemble inhomogène de boîtes.</i> . . . . .	41
2.1.3	<i>Facteur correctif <math>\frac{T_x}{T_y}(\lambda)</math> en polarisation linéaire de la lame semi-transparente utilisée sur notre montage de macro-photoluminescence. En ligne continue, le fit que nous utilisons pour corriger nos données.</i> . . . . .	42
2.1.4	<i>Spectre de photoluminescence sur une boîte quantique isolée.</i> . . . .	43
2.1.5	<i>Montage de micro-photoluminescence pour l'étude d'une boîte quantique unique.</i> . . . . .	44

2.1.6	<i>Fabrication des mésas à la surface des échantillons.</i>	45
2.1.7	<i>Image de la collection du signal sur une mésa.</i>	46
2.1.8	<i>Image CCD de l'émission de deux boîtes quantiques isolées spectralement vers 1.38 eV.</i>	47
2.1.9	<i>Franges d'interférence en champ blanc sur la barette CCD illuminée par l'arrière.</i>	48
2.1.10	<i>Correction d'images sur la caméra CCD.</i>	49
2.1.11	<i>Montage de micro-photoluminescence dans lequel a été inséré un interféromètre de Michelson pour réaliser de la spectroscopie par transformée de Fourier.</i>	51
2.1.12	<i>Interférences produites par l'interféromètre de Michelson sur un profil de raie lorentzien.</i>	53
2.2.13	<i>Wafer à gradient d'épaisseur d'InAs.</i>	55
3.1.1	<i>Observation des ailes de phonons acoustiques sur une boîte quantique unique II-VI et sur une ensemble de boîtes InAs.</i>	61
3.1.2	<i>Observation des ailes de phonons acoustiques dans le spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique InAs.</i>	63
3.1.3	<i>Distribution spectrale des photons émis lors de la recombinaison radiative de l'exciton dans une boîte quantique dans le cadre du modèle de Huang-Rhys.</i>	65
3.1.4	<i>Accord théorie-expérience pour les ailes de phonons de la boîte quantique <math>\alpha</math>. En encart, l'évolution en température de la largeur spectrale de la raie centrale lorentzienne.</i>	67
3.1.5	<i>Visibilité des ailes en fonction de la largeur de la raie à zéro phonon.</i>	68
3.2.1	<i>Déphasage assisté par les phonons acoustiques de la transition fondamentale d'un puits quantique.</i>	70
3.2.2	<i>Les deux types de processus de déphasage pur de l'exciton fondamental introduits par Takagahara pour une boîte quantique.</i>	74
3.2.3	<i>Largeur de la raie à zéro phonon (points) : mesures par mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes [24]. Accord (trait plein) donné par la théorie des transitions virtuelles déphasantes de la référence [74].</i>	75

3.2.4	<i>Exemples de rugosité sur des parois de mésas (GaAs à gauche, Ge à droite) observées en microscopie électronique. . . . .</i>	77
3.3.1	<i>Rétrécissement de la raie d'émission de la transition fondamentale d'une boîte unique lorsque l'excitation se rapproche de la résonance. 79</i>	79
3.3.2	<i>Elargissement à 10 K en fonction de la puissance d'excitation de la raie d'émission de la transition fondamentale des boîtes quantiques A,B,C et D sous excitation non-résonante à 1.96 eV. . . . .</i>	81
3.3.3	<i>Elargissements en puissance des raies d'émission des quatre boîtes quantiques A,B,C et D à différentes températures, sous excitation non-résonante dans le GaAs à l'aide d'un laser à 1.96 eV. . . . .</i>	82
3.3.4	<i>Elargissement en température de la raie d'émission correspondant à la transition fondamentale des boîtes A et B sous différentes puissances d'excitation. . . . .</i>	84
3.3.5	<i>"Métastabilité" : mesures de largeur de raie en fonction de la température réalisées au niveau de la transition fondamentale sur la même boîte quantique à quelques jours d'intervalle. . . . .</i>	89
4.0.1	<i>Cascade radiative bi-excitonique dans une boîte quantique. . . . .</i>	94
4.1.1	<i>Splitting d'échange <math>\Delta</math> en fonction de l'énergie sur l'ensemble de la distribution inhomogène de l'échantillon E.[99] . . . . .</i>	97
4.1.2	<i>Analyse en polarisation linéaire suivant X et Y de la photoluminescence à 300 K sous excitation non-résonante à 1.46 eV de l'échantillon E. Le taux de polarisation linéaire moyen sur la raie inhomogène est de +9%. . . . .</i>	98
4.1.3	<i>Analyse en polarisation linéaire de l'émission de trois boîtes quantiques différentes. . . . .</i>	99
4.1.4	<i>Exemple de profil dispersif créé en effectuant la différence entre deux lorentziennes de même largeur 20 <math>\mu</math>eV, de même norme et décalées de <math>\Delta = 20 \mu</math>eV, c'est-à-dire d'une valeur comparable à leur largeur. . . . .</i>	101
4.1.5	<i>Résultats obtenus grâce à la technique du profil dispersif sur les boîtes 1,2 et 3. . . . .</i>	102
4.1.6	<i>Une grosse méssa de 10 <math>\mu</math>m de côté vue à travers notre microscope. 104</i>	104

4.1.7	<i>Modification du taux d'émission spontanée <math>\frac{1}{\tau_{rad}}</math> d'un dipôle situé à proximité d'une interface plane infinie air-verre. . . . .</i>	106
4.1.8	<i>Polarisation de la luminescence de la couche de mouillage sur la méso 3. . . . .</i>	108
4.1.9	<i>Intensité de photoluminescence, largeur de la raie d'émission et taux de polarisation linéaire pour la photoluminescence sous excitation non-résonante, en fonction de la puissance d'excitation, pour la boîte quantique 3 de l'échantillon A. . . . .</i>	110
4.1.10	<i>Etude en température du taux de polarisation linéaire du signal de photoluminescence provenant de la transition fondamentale de différentes boîtes quantiques uniques sous excitation non-résonante dans le GaAs. . . . .</i>	111
4.1.11	<i>Statistique sur plusieurs centaines de boîtes uniques du taux <math>R_L</math> de polarisation linéaire de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs sur les 4 échantillons A,B,C et D. . . . .</i>	112
4.1.12	<i>Corrélations (splitting d'échange) - (énergie d'émission) sur les boîtes uniques des quatre échantillons A,B,C et D. . . . .</i>	114
4.1.13	<i>Splitting d'échange <math>\Delta</math> en fonction de la valeur absolue du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs. . . . .</i>	115
4.1.14	<i>Splitting d'échange relatif <math>E_Y - E_X</math> en fonction du taux de polarisation linéaire <math>R_L</math> de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs. . . . .</i>	116
4.2.1	<i>A) Structure de bandes au voisinage du gap d'un cristal semiconducteur III-V à gap direct, tel InAs ou GaAs. B) Effet d'une contrainte biaxiale, les trous légers sont envoyés à plus basse énergie.</i>	117
4.2.2	<i>Transition fondamentale de la boîte correspondant à la recombinaison radiative d'un électron dans le premier niveau électronique avec un trou dans le premier état de valence. . . . .</i>	122
4.2.3	<i>Polarisation des photons émis lors de la recombinaison radiative au niveau de la transition fondamentale interbande d'une boîte quantique modèle, à symétrie circulaire autour de l'axe de croissance. . . . .</i>	123
4.2.4	<i>Processus coulombiens, direct et d'échange, entre les paires d'électrons <math>(c',v)</math> et <math>(c,v')</math>. . . . .</i>	126

4.2.5	<i>La transition fondamentale 4 fois dégénérée représentée comme une transition entre états électroniques. . . . .</i>	132
4.2.6	<i>Image synchrotron et image STM d'une boîte unique InAs/GaAs. . . . .</i>	135
4.2.7	<i>Potentiel piezo-électrique calculé pour une boîte à base carrée de composition non-uniforme. . . . .</i>	136
4.2.8	<i>Schéma des levées de dégénérescence au sein de la transition fondamentale sous l'action de l'interaction d'échange électron-trou. . . . .</i>	137
4.2.9	<i>Modélisation de la structure fine de la photoluminescence d'une boîte quantique unique dans le cas de l'exciton lourd : deux raies polarisées linéairement orthogonales selon <math>[110]</math> et <math>[1\bar{1}0]</math> et d'intensités proches. . . . .</i>	138
4.2.10	<i>Evolution du taux de polarisation en fonction de l'ellipticité <math>\epsilon</math> à rayon moyen fixé et en fonction du rayon moyen <math>R_m</math> à ellipticité constante. . . . .</i>	140
4.2.11	<i>Topographie AFM <math>2 \times 1 \mu\text{m}^2</math> de 1.5 monocouches d'InAs sur GaAs (001). . . . .</i>	143
4.2.12	<i>Evolution du splitting d'échange en fonction du rayon moyen <math>R_m</math> d'une boîte d'ellipticité <math>\epsilon = 0.2</math> et de hauteur 2.5 nm. . . . .</i>	145
4.3.13	<i>Photoluminescence non-résonante sous champ magnétique, analysée en polarisations circulaires <math>\sigma^+</math> et <math>\sigma^-</math>, de la boîte 3 de l'échantillon A. . . . .</i>	149
4.3.14	<i>Décalages Zeeman et diamagnétique observés sur les spectres de photoluminescence au niveau de la transition fondamentale de la boîte 3 de l'échantillon A. . . . .</i>	150
4.3.15	<i>Analyse en polarisation linéaire X et Y du signal de luminescence non-résonante sous champ magnétique en configuration Faraday sur la boîte 3 de l'échantillon A. . . . .</i>	154
5.1.1	<i>Image des mécanismes Elliot-Yafet et D'yakonov-Perel pour la relaxation du spin des porteurs dans les semiconducteurs massifs. . . . .</i>	160
5.1.2	<i>Expérience de photoluminescence résolue en temps et en polarisation suivant X et Y d'un ensemble de boîtes après une excitation résonante polarisée linéairement suivant X [28]. . . . .</i>	163

5.2.3	<i>Photoluminescence de l'échantillon E à 10 K sous excitation non-résonante à 1.46 eV.</i>	165
5.2.4	<i>Taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de l'ensemble de boîtes de l'échantillon E en fonction de la température (carrés). En trait continu, accord donné par notre modèle avec une loi thermoactivée pour le taux de relaxation du spin de l'exciton dans les boîtes <math>\gamma_s(T) = 0.46 + 9000 \exp \frac{-45meV}{kT}</math> (<math>ns^{-1}</math>).</i>	165
5.2.5	<i>Modélisation à basse température de la photoluminescence sous excitation non-résonante continue d'une boîte quantique dont la structure fine de la transition fondamentale se compose de deux transitions polarisées linéairement X et Y de force d'oscillateur différente.</i>	167
5.2.6	<i>Taux <math>R_L</math> de polarisation linéaire de la photoluminescence, normalisé à sa valeur à saturation <math>R_L^{sat}</math>, en fonction du temps de relaxation de spin de l'exciton pour une boîte quantique présentant des forces d'oscillateur différentes pour les transitions X et Y.</i>	169
5.3.7	<i>Expérience de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation, sur la boîte 3 de l'échantillon A, sous excitation non-résonante au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage.</i>	173
5.3.8	<i>Signal de photoluminescence résolu dans le temps et en température, sur la boîte 3 de l'échantillon A, sous excitation non-résonante au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage.</i>	175
5.3.9	<i>Schéma de la structure fine de l'exciton neutre fondamental dans une boîte quantique InAs/GaAs.</i>	176
5.4.10	<i>Photoluminescence de l'ensemble de boîtes sous excitation quasi-résonante à 1.38 eV à 10 K.</i>	180
5.4.11	<i>Taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de la distribution inhomogène de boîtes de l'échantillon E en fonction de l'angle <math>\theta</math> de la polarisation linéaire du laser, lors d'une excitation sélective à 1.41 eV et à 10 K.</i>	181

5.4.12	<i>Modélisation de la photoluminescence d'une boîte quantique à température nulle dans le cas d'une excitation sélective proche de la résonance où la mémoire de la polarisation de l'excitation est partiellement préservée. Le paramètre <math>\alpha</math> caractérise cette mémoire.</i>	182
5.4.13	<i>Exemples de modélisation du taux de polarisation linéaire <math>R_L</math> de la photoluminescence d'une boîte quantique sous excitation quasi-résonante en fonction de <math>\theta</math>.</i>	185
5.4.14	<i>Spectres de photoluminescence en excitation quasi-résonante à 10 K sur l'échantillon E pour différentes énergies du laser exciteur.</i>	186
5.4.15	<i>Temps de relaxation de spin à 10 K au sein de la distribution inhomogène de boîtes sous différentes conditions d'excitation quasi-résonante.</i>	188
5.4.16	<i>Temps de relaxation du spin excitonique à 10 K en fonction de l'énergie d'excitation pour les boîtes quantiques de trois parties distinctes de la distribution inhomogène de l'échantillon E (partie centrale, partie haute énergie et partie basse énergie).</i>	190
5.4.17	<i>Représentation 3D du facteur <math>\alpha</math> de mémoire de la polarisation de l'excitation dans différentes situations d'excitation quasi-résonante et pour les différentes boîtes de la distribution inhomogène de l'échantillon E.</i>	191
5.4.18	<i>Facteur <math>\alpha</math> de mémoire de la polarisation du laser exciteur en fonction de l'énergie d'émission des boîtes au sein de la distribution inhomogène de l'échantillon E, dans le cas d'une excitation quasi-résonante à 10 K à l'aide de la première réplique LO.</i>	192
5.4.19	<i>Spectres bruts de taux de polarisation de la photoluminescence des boîtes de l'échantillon E en excitation quasi-résonante à 1.29 eV.</i>	197
5.4.20	<i>Les trois configurations d'excitation quasi-résonante pour lesquelles nous réalisons l'étude en température sur l'échantillon E : excitation partie haute énergie de la distribution, milieu de distribution et partie basse énergie.</i>	199
5.4.21	<i>Temps de relaxation de spin en fonction de la température pour l'ensemble de la distribution des boîtes de l'échantillon E dans trois conditions d'excitation quasi-résonante différentes.</i>	201

5.4.22	<i>Temps de relaxation de spin en fonction de la température pour les boîtes de la partie basse énergie de la distribution sous excitation sélective sur la partie haute énergie de la distribution. . . . .</i>	202
5.4.23	<i>Facteur de mémoire <math>\alpha</math> de la polarisation de l'excitation en fonction de la température pour l'ensemble de la distribution des boîtes dans les trois conditions d'excitation quasi-résonante différentes. .</i>	203

# Remerciements

*Merci à tous les membres de mon jury tout d'abord, Xavier Marie, Jean-Michel Gérard, Maria Chamarro, Carlo Sirtori, Jean-Yves Marzin et Robson Ferreira, pour leur participation et l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux de thèse.*

*Merci à l'ensemble du laboratoire Pierre Aigrain, ainsi qu'à son directeur Claude Delalande, pour m'y avoir fait me sentir chez moi dès le début.*

*Un immense merci à Guillaume pour toujours avoir été disponible et plus que compétent à tous les instants pendant ces trois années. Merci pour ta gentillesse et aussi pour la lecture "critique" (les physiciens parleraient de "super-critique") du manuscrit. L'ensemble de ce travail n'aurait pas abouti de la même façon sans toi. Je veux remercier également l'autre lecteur assidu de ma prose, et néanmoins directeur de thèse, Philippe. Tu m'as dit apprécier mon vocabulaire, en voici un peu aujourd'hui : sois loué pour ta capacité d'écoute, ta finesse et ta vision concise sur les questions scientifiques, que j'ai toujours appréciées. Merci aussi à Christophe et Jérôme pour les discussions de science et d'autre et bonne chance avec les nounours à la maison, c'est beaucoup plus glouton qu'un chat. Merci à Robson surtout et Christiano plus récemment pour les explications théoriques et la clarté des concepts énoncés, j'aime beaucoup la théorie et ça a été un plaisir de pouvoir y goûter sérieusement par des discussions.*

*Un grand merci et courage à tous les occupants de la mezzanine, passés et à venir, du J-Seb des débuts à la dernière arrivée, Alice (merci pour ta motivation dès le début). A Arnaud, Sébastien et Carole, mes co-statutaires, eux aussi concernés par les intérêts de l'armement français, et compagnons de lutte scientifique sur la voie du "optical quantum condensate of single triply magnetic nanotubes for in vivo imaging". Je vois le papier d'ici, on tient un truc là, faut pas laisser tomber. Un remerciement aussi aux théoriciens, bretons ou regular, Phuong et Aleksandar, que j'ai tellement paniqués avec mes résultats tordus qu'ils ont fini par quitter la recherche : bonne chance dans le monde de ceux qui ont déjà trouvé. A Arnaud aussi (je l'ai déjà dit non ?). Je sais qu'un coeur sensible se cache derrière tes calambours répétitifs. Fais toi accepter comme tu es ! Bon, on va manger ?*

*Merci à toute la bande du ministère : Premier ministre : Pascal Morfin. Directeur de cabinet : Olivier Andrieux (il n'y a rien de dégradant à être directeur*

de cabinet, je l'ai toujours dit). Conseiller en communication : Michael. Superintendant : Philippe. Responsable caisse noire : Mr Ho. Merci à Monsieur Ramona pour son extra-lucidité persistante. Je remercie également les services techniques de choc, au premier rang desquels David Darson, le seul homme à s'y connaître aussi bien en électronique qu'en optique et en aviation (à l'exception de James Bond dans l'espion qui m'aimait). La CCD nous a donné des ailes au début de ces travaux. Merci aussi à Anne, Martial et Laurent pour tout leur travail sur nos projets.

Alors que le sixième opus d'Harry Potter vient de sortir et fait la une des journaux et des métros, ce manuscrit de thèse, qui a fait le choix courageux de ne pas aborder la question de la magie, s'en démarque d'emblée en caracolant déjà en queue des ventes cet automne. Après un achat par erreur la semaine dernière suivi d'une plainte, l'auteur peut déjà s'enorgueillir, au coeur de la polémique suscitée par l'ouvrage depuis les "faits" du 21 octobre 2005, d'avoir su déjouer trois agressions en pleine rue ainsi que l'envoi d'un colis piégé de marque "bricorama". Que la censure des critiques littéraro-néo-autocratiques n'empêche cependant pas tous les fans des boîtes quantiques de se ruer sur le manuscrit, ils y trouveront de la passion, du doute, de l'aventure aussi (le combat contre l'armée des quatre-cents boîtes!) et quelques saillies drolatiques à caractère privé. Après tout Socrate et Jacques Pradel ont, eux-aussi, eu leurs détracteurs en leur temps, le public jugera.

Merci à l'agence des francs bourgeois de Clichy, pour l'aide logistique pointue pendant la phase finale de la thèse : Bix, Mélanie, Raphaël et Laura, au sommet comme toujours. Un souvenir pour les déjeuners thaï pluvieux, et tout le reste nécessitera un livre. Enfin des milliards de bisous pour Mademoiselle Laetitia Karanganwa, l'éminence cachée de cette thèse, qui me chuchotait chaque soir l'expérience à faire et qui m'expliqua un jour : "une boîte quantique, c'est pas compliqué, c'est juste quelques milliers d'atomes". C'est vrai, c'est que quelques milliers d'atomes après tout.

# Introduction

Dans le domaine du traitement quantique de l'information, les boîtes quantiques de semiconducteurs occupent depuis plusieurs années une place de choix pour les physiciens de la matière condensée. Parmi les différents systèmes étudiés et utilisés pour réaliser des briques élémentaires nécessaires au développement du calcul quantique ou de la cryptographie quantique, elles se positionnent en effet de façon originale, entre physique fondamentale et applications.

Alors que les atomes sont des entités de matière très finement comprises et contrôlées dans les laboratoires, qui permettent d'étudier des situations modèles pour la physique quantique, les boîtes quantiques constituent des systèmes plus complexes (des nanostructures de quelques milliers d'atomes plongées dans une matrice cristalline). Leur comportement approche parfois celui des atomes, puisque les porteurs qui y sont piégés adoptent des niveaux d'énergie discrets, tels les électrons occupant des orbitales atomiques, mais les boîtes quantiques présentent l'avantage d'être issues du domaine de l'industrie de l'opto-électronique (celles que nous étudions dans cette thèse sont fabriquées à partir d'arséniure d'indium et d'arséniure de gallium, deux semiconducteurs classiques de ce domaine) et elles offrent une intégration facile dans des dispositifs de taille réduite, comme le montrent déjà les lasers à boîtes quantiques.

L'évolution des techniques de spectroscopie dans le but d'atteindre l'échelle de la boîte quantique unique (quelques dizaines de nanomètres) a permis, en s'affranchissant des effets d'inhomogénéité de boîte à boîte dans un ensemble, de tirer le meilleur parti des propriétés pseudo-atomiques des boîtes quantiques et a donné lieu à de très belles réussites en optique quantique, dans la lignée des avancées faites par la physique atomique : réalisation de sources de photons uniques [1, 2, 3, 4], de sources de photons indiscernables [5, 6], couplage fort d'une boîte avec un mode du champ électromagnétique [7, 8, 9]. Ces réalisations, dont une grande partie est le résultat de progrès technologiques dans la fabrication de microcavités, permettent d'observer dans le monde des semiconducteurs des comportements quantiques auparavant réservés aux atomes en milieu dilué.

Ces différents succès ne doivent pas faire oublier que les boîtes quantiques sont des systèmes de matière condensée et que la compréhension fine de leur comportement, dans le but d'améliorer les applications, nécessite de s'intéresser à des problèmes complexes mêlant physique des semiconducteurs et physique nanosco-

pique. A cet égard, la recherche sur les boîtes quantiques a été riche d'observation de comportements originaux pour des électrons en matière condensée : hybridation des états électroniques d'une boîte avec des niveaux de Landau 2D [10], interaction coulombienne directe et d'échange décuplée à cause du confinement quantique [11, 12, 13], couplage fort des électrons avec les phonons optiques [14] ou encore interaction flip-flop des électrons avec les spins nucléaires du réseau cristallin [15]. C'est dans l'esprit de ces recherches que nos travaux se situent.

Dans la quête pour la réalisation d'un ordinateur quantique à base de composants compacts à l'état solide, les boîtes quantiques auto-organisées sont parmi les candidats les plus cités, avec les jonctions Josephson. A ce titre, il est intéressant de confronter les boîtes quantiques aux 5 critères de DiVincenzo [16], auxquels il est devenu courant de confronter tout système candidat au développement d'un tel ordinateur. D'après DiVincenzo, tout bon système candidat doit présenter les 5 caractéristiques suivantes : 1. Existence de qubits (l'espace de Hilbert dans lequel se fait le calcul peut être partitionné en un produit de  $N$  systèmes à deux niveaux, c'est-à-dire un registre de  $N$  qubits). 2. Possibilité d'initialisation (chacun des qubits doit pouvoir être initialisé indépendamment au sein du registre et dans l'état voulu). 3. Possibilité d'appliquer un ensemble de portes logiques universelles aux qubits du registre (possibilité d'un couplage cohérent contrôlé entre les qubits). 4. Cohérence (chacun des qubits doit être assez bien isolé de son environnement pour permettre le maintien de sa cohérence tout au long du calcul). 5. Mesure (il doit être possible d'effectuer efficacement une mesure projective du résultat du calcul).

Dans les boîtes quantiques, deux supports de qubits ont pour l'instant motivé les efforts expérimentaux : le premier utilise les états excitoniques impliqués dans la transition fondamentale (qubit excitonique), le second utilise les états de spin (qubits de spin).

Le qubit excitonique est fondé sur les deux états excitoniques correspondant à la boîte quantique vide (état  $|0\rangle$ ) et à la boîte occupée par un exciton dans le niveau fondamental (état  $|1\rangle$ ). Sur le plan conceptuel, un registre quantique peut alors être constitué sur un support de  $N$  boîtes quantiques similaires, avec un qubit par boîte, c'est à dire au plus un exciton par boîte. Le second critère de DiVincenzo, concernant l'initialisation, a déjà été vérifié pour ce type de schéma : plusieurs expériences d'oscillation de Rabi sur la transition fondamentale d'une boîte quantique ont en effet montré qu'il est possible optiquement de préparer un exciton dans une boîte dans une superposition quelconque des états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$  [17, 18, 19, 20]. Après avoir attribué un qubit à chaque boîte, le troisième critère, sur l'application de portes logiques, suppose de pouvoir réaliser un couplage cohérent de deux excitons dans deux boîtes différentes. Les recherches sur un tel couplage ont déjà été nombreuses mais restent difficiles. Différentes indications indirectes de couplage entre deux boîtes ont été apportées, par des études de corrélations d'émission de photons, interprétées dans le cadre

d'un couplage de type Förster entre boîtes [21], ou par des études sous champ magnétique, interprétées dans le cadre d'un couplage cohérent [22]. Ce n'est que très récemment que des expériences sous champ électrique dans une structure Schottky ont pu, à l'appui d'une modélisation, donner une première preuve satisfaisante de l'existence d'un couplage cohérent entre deux boîtes séparées d'une dizaine de nanomètres [23]. L'amélioration du contrôle de la fabrication, dans le but de produire des boîtes suffisamment identiques pour être couplées efficacement sans action extérieure, devrait permettre de progresser dans cette voie.

Concernant la cohérence, c'est-à-dire le quatrième critère, des premières mesures du temps  $T_2$  de décohérence ont été réalisées sur des ensembles inhomogènes de boîtes en novembre 2001 par une technique d'écho de photons [24, 25], suivies quelques mois plus tard par Bayer et Kammerer, qui obtiennent parallèlement les premières mesures à l'échelle de la boîte unique [26, 27]. Toutes ces mesures indiquent que la cohérence du qubit excitonique dans une boîte quantique se perd en quelques centaines de picosecondes à 10 K, c'est à dire plus rapidement que le déclin imposé par la recombinaison radiative de l'exciton. Ces résultats, mettant en lumière un couplage résiduel de l'exciton dans la boîte avec son environnement, ont amené beaucoup de questions sur la nature de ce couplage et sur les mécanismes de décohérence dans un tel nano-objet. Nous répondrons à certaines de ces questions dans le chapitre III, intitulé "Décohérence à basse température", dans lequel nous détaillerons le rôle des phonons acoustiques dans ces mécanismes puis l'influence, sur la cohérence, de l'existence d'un environnement fluctuant autour de chaque boîte.

Contrairement au cas des structures de plus haute dimensionnalité, nous verrons que l'exciton dans une boîte quantique est en couplage non-perturbatif avec les phonons acoustiques. Dans ce système, l'entité d'excitation est en réalité mixte : elle est constituée d'un exciton habillé par un nuage de phonons acoustiques et ce nuage de phonons affecte les propriétés de cohérence de l'exciton. Nous montrerons ensuite que cette cohérence, en sus des phonons acoustiques, est aussi perdue à cause de l'existence d'un environnement électrostatique fluctuant autour de chaque boîte. La mise en évidence de l'existence de cet environnement fluctuant permet de lever le voile sur certains des processus d'élargissement dans les boîtes quantiques et offre des pistes pour améliorer les échantillons, dans le but d'atteindre avec plus de souplesse des temps de décohérence de l'ordre de la nanoseconde, fixés par la limite radiative. Combinés avec la possibilité de contrôler de manière cohérente les qubits excitoniques à l'aide d'impulsions ultra-courtes de quelques centaines de femtosecondes, de tels temps de cohérence laissent entrevoir la possibilité de réaliser des calculs de l'ordre du millier d'opérations élémentaires avant que la cohérence n'ait disparu.

Le second candidat pour l'implémentation de qubits dans les boîtes quantiques est le degré de spin des porteurs. Une expérience menée sur un ensemble de boîtes

quantiques InAs/GaAs en 2001 a montré que l'orientation du spin d'un exciton neutre dans une boîte quantique pouvait être figée pendant plusieurs dizaines de nanosecondes à 10 K, c'est à dire pendant beaucoup plus longtemps que le temps de vie radiatif [28]. Une autre expérience en 1998 avait déjà donné lieu à l'observation d'un comportement similaire, avec une perte de l'orientation en 0.9 ns à 4 K [29]. De tels résultats laissent entendre que le degré de spin d'un exciton dans une boîte est beaucoup mieux isolé de son environnement que l'exciton lui-même, ce qui invite à vouloir utiliser le spin comme support pour l'écriture des qubits. A cet égard, plusieurs voies sont envisageables.

La première de ces voies propose d'utiliser l'exciton neutre et ses deux états de spin  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , dont l'existence est régie par l'interaction d'échange électron-trou, comme états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . La manipulation optique d'un tel qubit nécessite de comprendre finement la nature de l'interaction de la lumière avec ces états. Dans ce contexte, nous nous intéresserons, dans le chapitre IV intitulé "Structure fine et anisotropie optique", à la symétrie précise des ces deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , à l'intensité de leur couplage à la lumière et à l'interaction d'échange qui leur donne naissance. Par une analyse systématique sur des boîtes structurellement différentes, provenant de 5 échantillons, nous verrons qu'il convient de tenir compte du détail des anisotropies géométriques et des états de contrainte dans les boîtes pour pouvoir comprendre et utiliser finement ces états, que ce soit comme support d'un qubit ou comme élément de départ pour une source de photons intriqués dans le domaine de la cryptographie quantique.

A ce jour, aucune expérience de cohérence sur une boîte unique ou sur un ensemble de boîtes n'a pu donner de valeur du temps de décohérence entre les deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  à 10 K. Les expériences de battements cohérents sur des ensembles de boîtes sont brouillées par l'inhomogénéité des boîtes et seul un temps de cohérence de 300 ps à 50 K et une valeur inférieure de 400 ps entre 10 et 40 K ont pour l'instant pu être fournies [30] (à comparer à un  $T_2$  typique de 50 ps à 50 K pour le qubit excitonique). Sur boîte unique, aucune expérience de cohérence entre  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  n'a été reportée. Le critère d'initialisation prévu par DiVincenzo, qui pourrait se traduire par la possibilité d'effectuer une oscillation de Rabi contrôlée entre  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sur boîte unique, n'est pour l'instant pas satisfait expérimentalement. Le critère 4, impliquant le couplage cohérent de spins excitoniques, est à ce jour également hors d'atteinte.

Dans ce contexte, il est important de comprendre de façon détaillée comment un spin dans une boîte quantique évolue et interagit avec son environnement. Dans le chapitre V, intitulé "Dynamique du spin de l'exciton", nous étudierons sur des ensembles de boîtes InAs/GaAs comme sur des boîtes uniques la dynamique de relaxation du spin de l'exciton neutre. Cette étude nous précisera dans quelle mesure les excitons dans les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont correctement isolés de leur environnement et peuvent conserver durablement leur orientation de spin. Après avoir observé des relaxations lentes de cette orientation à 10 K

(quelques dizaines de nanosecondes), nous montrerons que cette relaxation peut être accélérée (quelques centaines de picosecondes) en augmentant la température au dessus de 45 K ou en modifiant les conditions d'excitation lumineuse des boîtes, donnant une image de l'influence des phonons et des autres porteurs présents dans le système. Nous effectuerons ensuite les premières mesures de la dynamique de cette relaxation à l'échelle d'une boîte unique InAs/GaAs et nous nous intéresserons dans ce cas au rôle joué par les états excitoniques noirs de la boîte dans le processus de relaxation. L'ensemble de ces études amènent de nouvelles informations sur la façon dont un spin dans une boîte peut se coupler à son environnement mais aussi aux états noirs du système, protégés, eux, du couplage avec la lumière.

Les autres propositions de réalisation de qubits de spin utilisent le degré de spin d'un électron ou d'un trou dans une boîte quantique chargée. Aucune expérience de cohérence ou de couplage cohérent sur ces systèmes n'a non plus été réalisée. En l'absence d'un champ magnétique externe, l'orientation de spin d'un électron est d'abord perdue en 500 ps à cause de l'interaction hyperfine avec les noyaux de la matrice cristalline [31] puis perdue ensuite plus de 10 ns. L'orientation de spin d'un trou, mieux protégée de l'interaction hyperfine avec les noyaux, persiste elle 20 ns [32] sans relaxation aux temps courts. Ces deux systèmes permettent a priori autant d'espoirs que l'exciton neutre tant pour la réalisation de qubits bien isolés que dans le domaine des mémoires à base de boîtes quantiques. Nous n'aborderons pas le problème des boîtes chargées au cours de cette thèse et nous concentrerons sur le cas de l'exciton neutre.

Dans le chapitre I, nous présenterons quelques propriétés générales sur la physique des boîtes quantiques, en mettant l'accent sur les méthodes de calcul des fonctions d'onde dans une boîte, sur le modèle de l'atome à deux niveaux pour la transition fondamentale et sur le continuum des états mixtes (boîte quantique-couche de mouillage), mis en évidence par Angela Vasanelli et Cécile Kammerer durant leur thèse [27, 33].

Le chapitre II est consacrée à la présentation des méthodes expérimentales employées : macro et micro-photoluminescence, résolue en polarisation, dans le temps ou sous champ magnétique. Nous y présenterons également les 5 échantillons de boîtes étudiés pendant cette thèse.

Le chapitre III traite des problèmes de décohérence à basse température du qubit excitonique fondé sur l'exciton fondamental. Nous y détaillons le rôle joué par les phonons acoustiques dans les mécanismes de perte de cohérence puis, après avoir dressé un tableau des questions restées ouvertes au sujet de ces mécanismes, nous montrons que l'existence d'un environnement fluctuant permet d'apporter d'importants éléments de réponse.

Dans le chapitre IV, nous nous intéressons à la structure fine de la transition fondamentale correspondant à l'exciton neutre, à la symétrie des états excitoniques impliqués dans cette structure fine ainsi qu'à leur couplage à la lumière.

Nous présentons une étude systématique sur des boîtes d'anisotropies structurales différentes, dans les zones denses en boîtes et dans les zones diluées de nos échantillons, et montrons la nécessité de tenir compte du détail de la géométrie et des états de contrainte dans les boîtes pour comprendre les propriétés de polarisation de leur émission ainsi que l'ampleur des effets dus à l'interaction d'échange.

Au chapitre V enfin, nous abordons la question de la dynamique de relaxation du spin de l'exciton neutre. A 10 K, nous observons sur un ensemble de boîtes une relaxation du spin de l'exciton presque inhibée : elle s'effectue en plusieurs dizaines de nanosecondes et n'est activée thermiquement qu'à partir de 45 K. Sur boîte unique en revanche, nous observons une dynamique de relaxation rapide (quelque centaines de picosecondes) et montrons que les états noirs jouent un rôle important dans la dynamique au sein des états impliqués dans la structure fine. Finalement, par des expériences sur un ensemble de boîtes, nous mettons en évidence un passage continu, en modifiant les conditions d'excitation, d'un régime de relaxation lente à un régime de relaxation rapide. Nous interprétons ces résultats dans le cadre d'un couplage du spin de l'exciton dans la boîte avec un environnement qu'il est possible de modifier.

# Chapitre 1

## Les boîtes quantiques

### 1.1 Histoire des boîtes quantiques

Dans les années 1960, les premiers lasers à base de semiconducteurs utilisaient une simple jonction p-n polarisée comme milieu amplificateur. L'utilisation de doubles hétérostructures au début des années 70 permit, par le confinement des porteurs, une amélioration de l'inversion de population ainsi qu'une réduction des pertes, autorisant un fonctionnement à plus bas seuil et à plus haute température. L'apparition de techniques raffinées de croissance des matériaux, à la couche atomique près, ouvrit ensuite la porte à la fabrication de systèmes bidimensionnels, les puits quantiques, qui permirent d'améliorer encore ce confinement [34]. Au cours de recherches sur des structures de plus en plus minces, dans le but de réaliser des pseudo-alliages, c'est presque par hasard que l'observation d'un nouveau régime de croissance est réalisée, en 1985 au CNET (Centre National d'Etudes des Télécommunications) [35] : les couches plus minces accumulent plus de contraintes aux hétérointerfaces et donnent finalement lieu à une croissance rugueuse en îlots, qui vont devenir les boîtes quantiques auto-organisées. Alors que les possibilités offertes par un objet de plus basse dimensionnalité qu'un puits quantique avaient été pressenties dès 1982 [36] dans le contexte de la fabrication de lasers plus performants utilisant le rétrécissement de la courbe spectrale de gain et la réduction des effets thermiques sur le courant de seuil, la croissance de ces îlots ne sera maîtrisée et utilisée pour les lasers que dans les années 90, après que différentes autres techniques de fabrication de boîtes quantiques se sont montrées moins fructueuses pour les applications (nanolithographie, création de barrières latérales dans un puits quantique à l'aide d'une interdiffusion locale induite par échauffement).

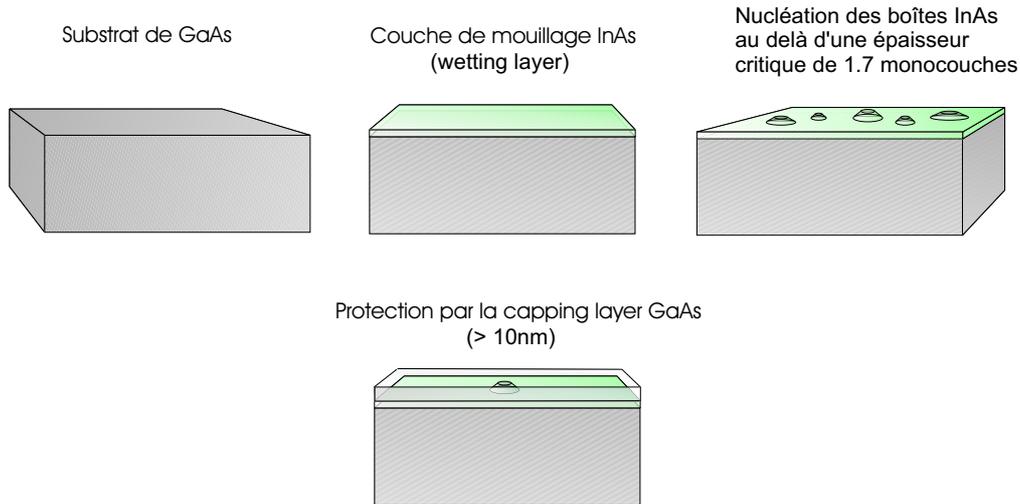


FIG. 1.1.1 – *Un bâti d'épitaxie par jets moléculaires (MBE).*

## 1.2 La croissance auto-organisée

Lors de la croissance d'un cristal A sur un substrat cristallin B de paramètre de maille différent, le cristal A tente de s'adapter au cristal B en le mouillant. Ce faisant, il accumule des contraintes qui, devenues trop importantes à partir d'une certaine épaisseur déposée (une à deux monocouches atomiques pour la croissance d'InAs sur GaAs suivant les conditions de croissance), vont se relaxer en donnant naissance à une nouvelle organisation de la surface. Une situation plus avantageuse énergétiquement s'impose par rapport au simple mouillage : l'apparition d'ilôts de croissance du cristal A au-dessus d'une couche de mouillage sous-jacente (wetting layer, WL). Ce mode de croissance en ilôts porte le nom de mode Stransky-Krastanov (il avait été prévu théoriquement par I.N.Stransky et L.Krastanov dès 1937)[37] et peut de nos jours être obtenu lors de croissances par épitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy ou MBE)(figure 1.1.1) ou par déposition chimique organico-métallique en phase vapeur (Metal Organic Chemical Vapor Deposition ou MOCVD). Pour le système InAs sur substrat GaAs, où le désaccord de maille des deux matériaux est de 7%, il permet l'obtention d'ilôts de taille ajustable autour d'une taille moyenne transverse de 40 nm et d'une hauteur de 5 nm [38], avec une dispersion de taille d'une dizaine de pourcents et des densités variables de  $10^8$  à  $10^{12}$  boîtes par centimètre carré. Ces ilôts sont ensuite recouverts d'une couche de protection (capping layer) du même matériau que le substrat (GaAs). A l'état final, nos boîtes quantiques sont donc des ilôts d'InAs plongés dans un environnement de GaAs (figure 1.2.2).

Aujourd'hui, la technique de croissance auto-organisée Stransky-Krastanov s'est largement imposée. Elle permet de créer des boîtes en faible densité surfacique, utiles pour les études expérimentales sur boîte unique, comme des boîtes en

FIG. 1.2.2 – *Echantillon épitaxié de boîtes quantiques.*

forte densité pour les applications laser. Notons également que plusieurs groupes parviennent à présent à forcer la croissance d'une boîte sur des zones très localisées où la contrainte a été accumulée volontairement par un motif préalablement inscrit [39, 40].

## 1.3 Les états d'une boîte quantique

Une boîte quantique est un objet qui s'étend sur une dimension typique de quelques 10 nm. A cette échelle, plus petite que la longueur d'onde de De Broglie pour les porteurs au voisinage du gap dans un semiconducteur usuel (100 nm), électrons et trous ressentent fortement les effets du confinement tridimensionnel et adoptent des niveaux discrets d'énergie. Cette discrétisation de la densité d'états des porteurs dans une boîte quantique invite à faire un parallèle avec la situation d'un électron dans un atome, qui occupe lui aussi des niveaux discrets. Cette analogie fructueuse a permis de populariser largement l'image de la boîte quantique comme atome artificiel en matière condensée [41].

### 1.3.1 Allure de la densité d'états

Une boîte quantique auto-organisée repose sur une couche de mouillage mince de quelques monocouches atomiques, constituant un puits quantique 2D. Elle est entourée par ailleurs d'une matrice de matériau barrière. Les porteurs peuvent donc occuper les états du continuum massif de la barrière, du continuum 2D de la couche de mouillage ou les états liés de la boîte elle-même. Dans un schéma à une particule, la densité d'états a donc l'allure donnée en figure 1.3.1.

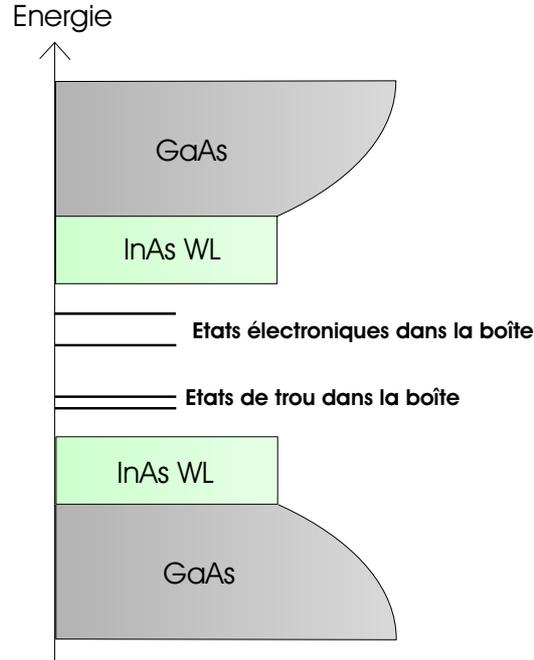


FIG. 1.3.1 – Allure de la densité d'états d'une boîte quantique dans une image à une particule.

### 1.3.2 Calcul des états quantiques d'une boîte

Différentes techniques sont actuellement employées pour calculer les états des porteurs confinés dans les nanostructures. Nous passons en revue deux d'entre elles appliquées au cas des boîtes quantiques, après avoir introduit la méthode de calcul  $\vec{k}, \vec{p}$  dans le matériau massif.

#### La méthode $\vec{k}, \vec{p}$

L'équation de Schrödinger à 1 électron dans un cristal s'écrit :

$$\hat{H}_0 \psi(\vec{r}) = \left( \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) \psi(\vec{r}) = E \psi(\vec{r}) \quad (1.3.1)$$

où  $V(\vec{r})$  est le potentiel cristallin moyen ressenti par l'électron.

En introduisant dans cette équation les fonctions d'onde des états électroniques prévues par le théorème de Bloch :

$$\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n\vec{k}}(\vec{r}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (1.3.2)$$

où  $n$  est l'indice de bande, on peut écrire une équation effective sur les parties atomiques  $u_{n\vec{k}}$  qui fait intervenir un hamiltonien effectif  $H_{\vec{k}, \vec{p}}$  appelé hamiltonien  $\vec{k}, \vec{p}$  :

$$\left( \frac{\hat{p}^2}{2m} + \hbar \frac{\vec{k} \cdot \vec{p}}{m} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n\vec{k}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.3.3)$$

qui se réduit en  $\vec{k} = \vec{0}$ , au centre de la zone de Brillouin, à :

$$\hat{H}_0 u_{n\vec{0}}(\vec{r}) = E_{n\vec{0}} u_{n\vec{0}}(\vec{r}) \quad (1.3.4)$$

Si la structure de bandes possède un extremum en  $\vec{k} = \vec{0}$  et si elle y est non dégénérée, la théorie des perturbations permet d'exprimer les parties atomiques  $u_{n\vec{k}}$  en fonction des  $u_{n\vec{0}}$  :

$$u_{n\vec{k}} = u_{n\vec{0}} + \frac{\hbar}{m} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle u_{n\vec{0}} | \vec{k} \cdot \vec{p} | u_{n'\vec{0}} \rangle}{E_{n\vec{0}} - E_{n'\vec{0}}} u_{n'\vec{0}} \quad (1.3.5)$$

En connaissant les fonctions atomiques de centre de zone  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  correspondant aux différentes bandes et le potentiel  $V(\vec{r})$ , la méthode  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  permet de calculer les fonctions électroniques de Bloch sur la totalité de la zone de Brillouin dans un cristal.

### L'approche fonction enveloppe

L'approche des fonctions enveloppes propose de construire les fonctions d'onde électroniques dans une nanostructure à partir des fonctions d'ondes atomiques  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  en centre de zone du cristal massif en les modulant par des fonctions à plus lente variation spatiale décrivant la nanostructure. Cette approche permet de conserver un langage de structure de bandes lors de l'analyse, un avantage non négligeable lorsqu'il s'agit de décrire les symétries des états notamment.

Un cas d'école pour présenter le formalisme des fonctions enveloppes est l'étude dans un cristal parfait d'un potentiel additif  $\phi(\vec{r})$  lentement variable à l'échelle de la cellule élémentaire [42]. L'équation de Schrödinger pour l'électron est alors :

$$(\hat{H}_0 + \phi(\vec{r}))\psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \quad (1.3.6)$$

où  $\hat{H}_0$  est l'hamiltonien du cristal parfait.

En prenant en compte N bandes, nous cherchons les fonctions d'ondes solutions de l'équation 1.3.6 sous la forme :

$$\psi(\vec{r}) = \sum_{n=1}^N c_n u_{n\vec{0}}(\vec{r}) \xi_n(\vec{r}) \quad (1.3.7)$$

où les  $\xi_n$  sont les fonctions enveloppes qui varient lentement à l'échelle de la cellule élémentaire et où les  $u_{n\vec{0}}$  sont les fonctions de Bloch atomiques au point central  $\Gamma$  de la zone de Brillouin du cristal parfait.

En introduisant cette forme de solution dans l'équation 1.3.6, il est possible d'écrire une équation de Schrödinger effective sur la partie enveloppe de la solution :

$$(\hat{D} + \phi(\vec{r}))\xi = E\xi \quad (1.3.8)$$

où  $\xi = \begin{pmatrix} c_1\xi_1 \\ c_2\xi_2 \\ \dots \\ c_N\xi_N \end{pmatrix}$  est un vecteur de dimension N et  $\hat{D}$  est un opérateur différentiel

de dimension  $N \times N$  qui contient l'action de  $\hat{H}_0$  sur la partie enveloppe après sommation sur les fonctions atomiques. La technique des fonctions enveloppes consiste, connaissant les  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  et le potentiel  $\phi(\vec{r})$ , à trouver une solution  $\xi$  à l'équation 1.3.8.

Nous présentons d'abord une description, basée sur l'approche des fonctions enveloppes avec une seule bande, des états électroniques dans une boîte quantique idéalisée. Cette description permet d'introduire vocabulaire et idées. La boîte quantique que nous étudions ici est un cône tronqué à base circulaire en InAs. Ce cône est plongé dans une matrice de GaAs (figure 1.3.2). Le potentiel  $\phi(\vec{r})$  est dans ce cas le potentiel de confinement dans la boîte résultant de la différence de gap des deux matériaux. Il s'agit bien d'un potentiel qui varie lentement à l'échelle de la cellule élémentaire puisqu'un cône d'un diamètre de 36 nm et d'une hauteur de 6 nm est constitué de quelques  $10^4$  cellules élémentaires.

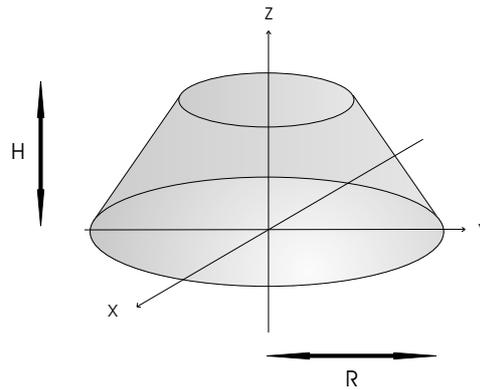


FIG. 1.3.2 – Géométrie d'une boîte quantique modèle.

Lorsqu'on ne considère qu'une bande, l'opérateur  $\hat{D}$  se réduit à  $\frac{\hat{p}^2}{2m^*}$ ,  $m^*$  étant la masse effective de l'électron dans la bande considérée. Les masses effectives sont différentes dans InAs et GaAs mais puisque nous cherchons des fonctions d'onde d'électrons localisées dans la boîte même, nous allons négliger cette différence et

écrire une seule équation de Schrödinger effective sur la partie enveloppe, valable à la fois dans la boîte InAs et dans son environnement GaAs :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m^*} + \phi(r)\right)\xi = E\xi \quad (1.3.9)$$

La boîte étudiée présente une symétrie de rotation par rapport à l'axe de croissance  $z$ , ce qui est probablement une hypothèse forte par rapport à la réalité. Dans cette approximation, le potentiel de confinement est à symétrie circulaire lui-aussi. L'hamiltonien régissant le mouvement de l'électron dans la boîte commute alors avec l'opérateur  $L_z$  de moment cinétique le long de  $z$ . Il est alors possible de choisir des états propres communs à  $\hat{H} = \frac{\hat{p}^2}{2m^*} + \phi(r)$  et à  $L_z$  pour décrire l'enveloppe des états stationnaires de l'électron dans la boîte. Par analogie avec le langage de la physique atomique, nous appellerons états  $s$ ,  $p$ ,  $d$  les états enveloppe de symétrie respective  $l = 0, 1, 2$ . Il n'y a qu'un nombre restreint d'états liés dans la boîte, d'autant plus restreint que la boîte est petite.

En utilisant une méthode variationnelle, Aleksandar Jankovic a calculé [43] les niveaux d'énergie des états  $s, p$  et  $d$  de l'électron dans une boîte de rayon variable et de hauteur constante, en prenant une masse effective de  $0.067 m_e$  dans la première bande de conduction et un potentiel de confinement en créneau valant  $V_0 = 0.697$  eV en dehors de la boîte et zéro dans la boîte (figure 1.3.3).

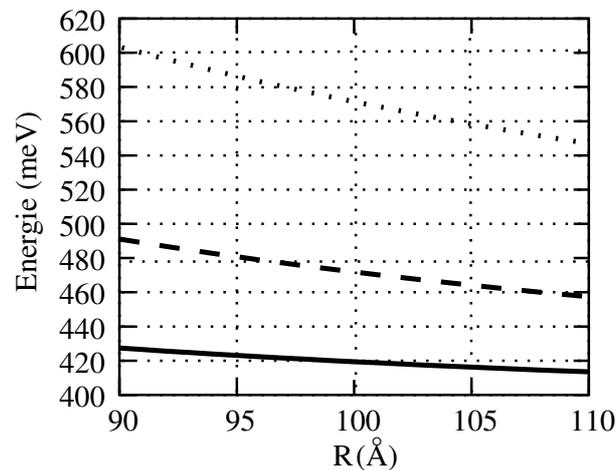


FIG. 1.3.3 – *Energie des premiers niveaux électroniques dans une boîte conique à symétrie circulaire de hauteur constante 1.5 nm en fonction du rayon de la boîte.*

Les niveaux de trous peuvent être obtenus avec la même approche, il suffit pour cela d'utiliser la masse effective dans la bande de valence considérée et un potentiel de confinement adapté.

### L'approche pseudo-potentiel

L'approche pseudo-potentiel s'intéresse à l'écriture, pour un électron dans un cristal, d'un potentiel effectif tenant compte de manière auto-cohérente de la contribution des électrons de valence.

Les électrons de valence des atomes dans un cristal sont ceux des couches électroniques extérieures partiellement remplies qui participent aux liaisons avec les atomes voisins. Ces électrons sont peu affectés par la charge du noyau qui est écrantée par les couches pleines l'entourant. La fonction d'onde d'un électron de valence, puisqu'elle est orthogonale à celle d'un électron des couches pleines proches du noyau, doit subir de fortes oscillations dans cette zone. Ceci autorise à séparer cette fonction d'onde en une partie oscillante rapide à l'échelle du rayon de Bohr et une partie lentement variable appelée pseudo-fonction d'onde [44]. L'approche pseudo-potentiel consiste à écrire une équation de Schrödinger effective sur cette pseudo-fonction d'onde :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m} + V_p(r)\right)\psi_p(r) = E\psi_p(r) \quad (1.3.10)$$

où  $V_p(r)$  est le pseudo-potentiel et  $\psi_p(r)$  est la pseudo-fonction d'onde.

Tout le problème réside alors dans le choix du pseudo-potentiel. Tout d'abord, notons que puisque la partie lentement variable a un très faible poids près du noyau, elle est très peu sensible à la forme que l'on va donner au pseudo-potentiel à cet endroit. Il suffit donc de trouver un pseudo-potentiel correct loin du noyau, ce qui peut-être fait dans un cristal par une méthode auto-cohérente [44].

Pour ce, il faut partir d'un pseudo-potentiel connu pour un atome unique et avoir un modèle pour la structure du cristal. Ceci permet de faire un premier calcul des pseudo-fonctions d'onde des électrons de valence et de leur contribution additionnelle au potentiel  $V_p(r)$ . Une fois cette contribution calculée, le pseudo-potentiel effectif pour un électron est connu, et peut être comparé au potentiel de départ. L'auto-cohérence de la démarche est assurée lorsque ces deux potentiels sont égaux.

Le groupe d'Alex Zunger, à l'Université du Colorado, a appliqué des versions raffinées de cette méthode à une grande quantité de problèmes, dont celui des boîtes quantiques de semiconducteurs. Nous reproduisons en figure 1.3.4 les fonctions d'onde d'électrons et de trous calculées pour des boîtes InAs dans GaAs pour des géométries circulaires et carrées [45].

Sur la partie droite de la figure 1.3.4, on reconnaît bien pour les électrons les symétries atomiques s, p et d des enveloppes lorsque la boîte est à base circulaire. La fonction d'onde  $e_0$  dans une boîte à base circulaire correspond à l'état électronique s,  $e_1$  et  $e_2$  correspondent aux états p,  $e_3$  et  $e_4$  correspondent à deux états d. Dans le cas de la boîte pyramidale à base carrée, les symétries qui apparaissent pour les fonctions d'onde électroniques sont un peu plus complexes

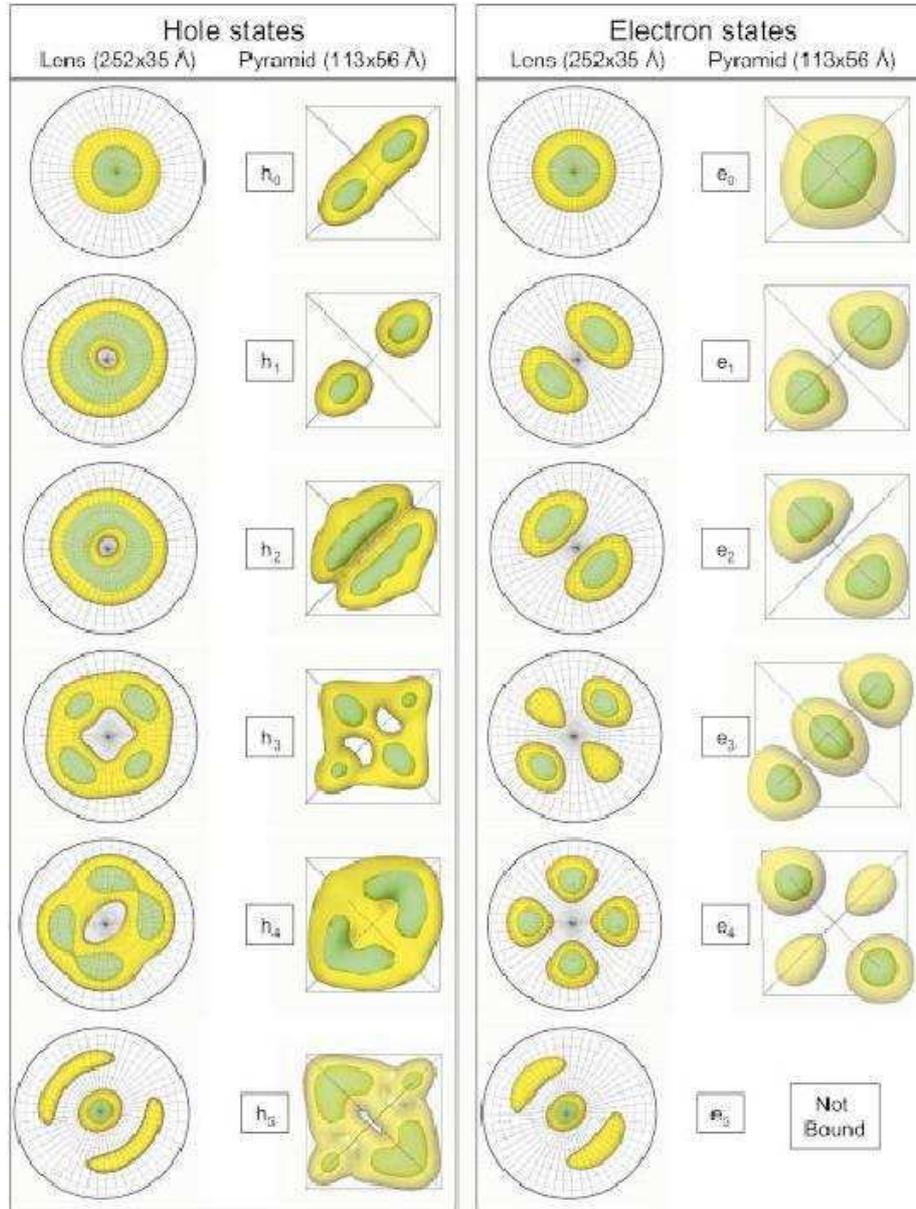


FIG. 1.3.4 – Allure des fonctions d'onde d'électrons et de trous calculées par l'approche pseudo-potential dans des boîtes quantiques de différentes géométries [45].

puisque la structure n'est plus invariante par toutes les rotations mais nous retrouvons tout de même l'allure globale des états s, p et d.

Le cas des trous est un peu plus complexe à cause d'un important effet de mélange des bandes de valence. Dans la géométrie à base carrée, on remarque notamment que la fonction d'onde du premier niveau de trou ( $h_0$  sur la figure

1.3.4) est constituée de deux lobes localisés dans des coins opposés de la boîte. L'existence de ces deux lobes est également prévue par d'autres calculs réalisés dans le cadre des fonctions enveloppes et incluant plusieurs bandes de valence. Dans ces calculs, les deux lobes résultent de l'effet piezo-électrique dans le cristal InAs dont est faite la boîte [46, 47]. Dans le cas de la pyramide à base circulaire en revanche, les fonctions d'onde des trous ressemblent plus à celles des électrons : état s correspondant à  $h_0$ , états p à  $h_1$  et  $h_2$  et états d à  $h_3$  et  $h_4$ .

## 1.4 L'interaction avec la lumière

### 1.4.1 Les transitions optiques

Diverses transitions radiatives sont envisageables entre les états des porteurs dans une boîte quantique : les transitions entre états électroniques ou entre états de trous sont appelées transitions intrabandes, par analogie avec le matériau massif, les transitions impliquant un électron et un trou sont appelées transitions interbandes (figure 1.4.6). Pour comprendre les règles de sélection sur ces transitions, on peut décomposer en leur partie atomique et leur partie enveloppe les fonctions d'onde des états des porteurs entre lesquels a lieu la transition.

Soit  $\psi_i(\vec{r}) = u_i(\vec{r})\xi_i(\vec{r})$  la fonction d'onde du porteur dans l'état initial avant la transition et  $\psi_f(\vec{r}) = u_f(\vec{r})\xi_f(\vec{r})$  celle de l'état final. Dans le cadre d'un couplage dipolaire à la lumière, l'élément de matrice qui caractérise la transition est  $|\langle \psi_i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{p} | \psi_f \rangle|^2$ , où  $\vec{\epsilon}$  est la polarisation du champ électrique, et il peut être séparé en deux termes :

1er terme.

$$\vec{\epsilon} \cdot \langle u_i | \vec{p} | u_f \rangle \cdot \int \xi_i^*(\vec{r}) \xi_f(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (1.4.11)$$

qui est responsable des transitions interbandes.

2ème terme.

$$\langle u_i | u_f \rangle \cdot \vec{\epsilon} \cdot \int \xi_i^*(\vec{r}) \vec{p} \xi_f(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (1.4.12)$$

qui est responsable des transitions intrabandes.

Nous nous intéressons dans les expériences de luminescence aux transitions interbandes. La transition de plus basse énergie  $s \leftrightarrow s$  est appelée transition fondamentale.

Les règles de sélection sur les transitions interbandes sont notamment fixées par la symétrie des fonctions enveloppes des états initiaux et finaux, qui doit être la même.

Seules les transitions interbandes

$$s \leftrightarrow s \quad p \leftrightarrow p \quad d \leftrightarrow d \quad (1.4.13)$$

sont donc autorisées, avec une sélection en polarisation donnée par les parties atomiques des fonctions d'onde.

### 1.4.2 Le continuum des états mixtes

L'allure du spectre d'absorption interbande sur une boîte unique est donné par la densité d'états jointe électron-trou et les règles de sélection que nous venons de décrire. Si nous ne considérons que les états de porteurs liés dans la boîte, ce spectre ne comprend que les transitions  $s \leftrightarrow s$   $p \leftrightarrow p$   $d \leftrightarrow d$ .

Si nous tenons compte en revanche de transitions "croisées" entre un état électronique de la couche de mouillage ou du massif GaAs et un état électronique lié dans la boîte, ou inversement entre un état de trou lié dans la boîte et un état de trou de la couche de mouillage ou du massif GaAs, alors le spectre d'absorption d'une boîte est modifié et correspond à ce qu'a calculé Angela Vasanelli durant sa thèse [33] (figure 1.4.5). Sur ce spectre, nous voyons les résonances  $s \leftrightarrow s$  et  $p \leftrightarrow p$  (notées respectivement 1Sh-1Se et 1Ph-1Pe sur la figure), l'absorption de la couche de mouillage seule (en pointillés sur la figure) et aussi un continuum, correspondant aux transitions croisées, qui commence à 15 meV de la transition fondamentale et dont le poids augmente à mesure que l'on s'approche du gap d'absorption de la couche de mouillage. Des résonances apparaissent dans ce continuum : par exemple Wlh-1Se correspond à la recombinaison d'un électron dans l'état  $s$  avec un trou de la couche de mouillage. Ce spectre d'absorption sur boîte unique est qualitativement très proche des spectres d'excitation de la photoluminescence obtenus par différents groupes [48, 49].

Nous décrivons ici les transitions optiques dans une boîte quantique comme des transitions entre états à une particule (électron ou trou). En réalité, les porteurs sont en interaction coulombienne les uns avec les autres et une description fondée sur des états à deux particules pourrait conceptuellement être plus correcte. Néanmoins, dans une boîte quantique, nous sommes dans un régime de confinement fort pour les porteurs (l'énergie de confinement est de quelques centaines de meV) et l'interaction coulombienne n'intervient qu'en perturbation dans le calcul de leur niveau d'énergie (cette correction coulombienne est de l'ordre de 1 meV). Il est donc légitime de garder une description à une particule pour traiter des transitions. Dans la suite du manuscrit, nous emploierons à loisir une description à une particule et utiliserons le terme exciton pour désigner une paire électron-trou corrélée par l'interaction coulombienne.

Avec ce point de vue excitonique, la prise en compte des transitions croisées dans le spectre d'absorption d'une boîte revient à autoriser pour l'exciton des

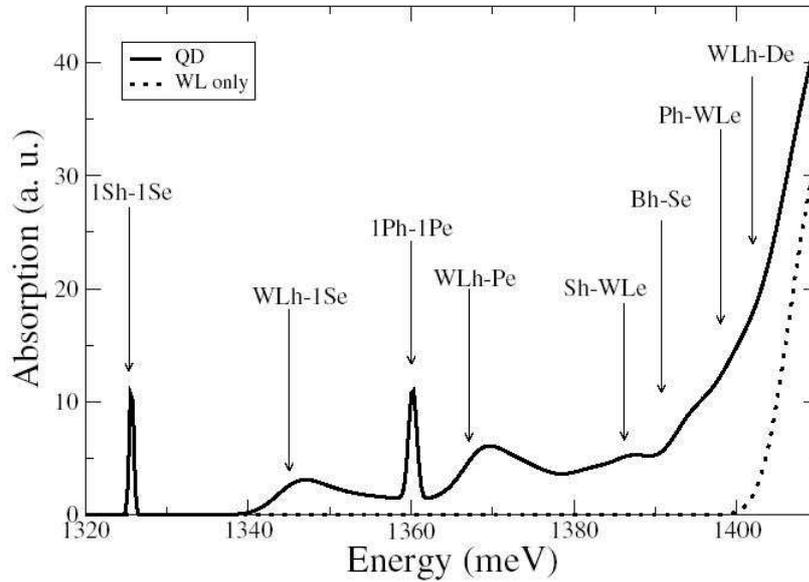


FIG. 1.4.5 – Calcul de l'absorption interbande d'une boîte unique tenant compte des états excitoniques mixtes boîte quantique-continuum 2D de la couche de mouillage. La ligne en pointillés correspond à l'absorption de la couche de mouillage seule.

états mixtes dans lesquels le trou est dans un continuum par exemple alors que l'électron est dans un état lié de la boîte.

Les spectres expérimentaux d'excitation de la photoluminescence [50] ainsi que le spectre théorique d'absorption montré en figure 1.4.5 donnent alors une bonne idée de l'allure de la densité d'états excitoniques d'une boîte quantique auto-organisée unique (aux règles de sélection près, qui interviennent dans l'absorption et pas dans la densité d'états). Cette densité d'états met en lumière le rôle important joué par la couche de mouillage 2D sur les états quantiques du système. C'est cette densité d'états qu'il est bon de garder en mémoire si l'on veut comprendre les mécanismes de relaxation dans les boîtes quantiques auto-organisées.

### 1.4.3 La photoluminescence

Dans une expérience de photoluminescence, on apporte de l'énergie par voie lumineuse à un objet et on regarde les photons émis par cet objet. Dans nos boîtes quantiques, nous pouvons le faire de manière non-résonante en excitant des porteurs dans le matériau barrière GaAs par exemple et en regardant les photons émis au niveau de la transition fondamentale après une cascade non radiative

(figure 1.4.6). C'est ce que nous appellerons la photoluminescence non-résonante.

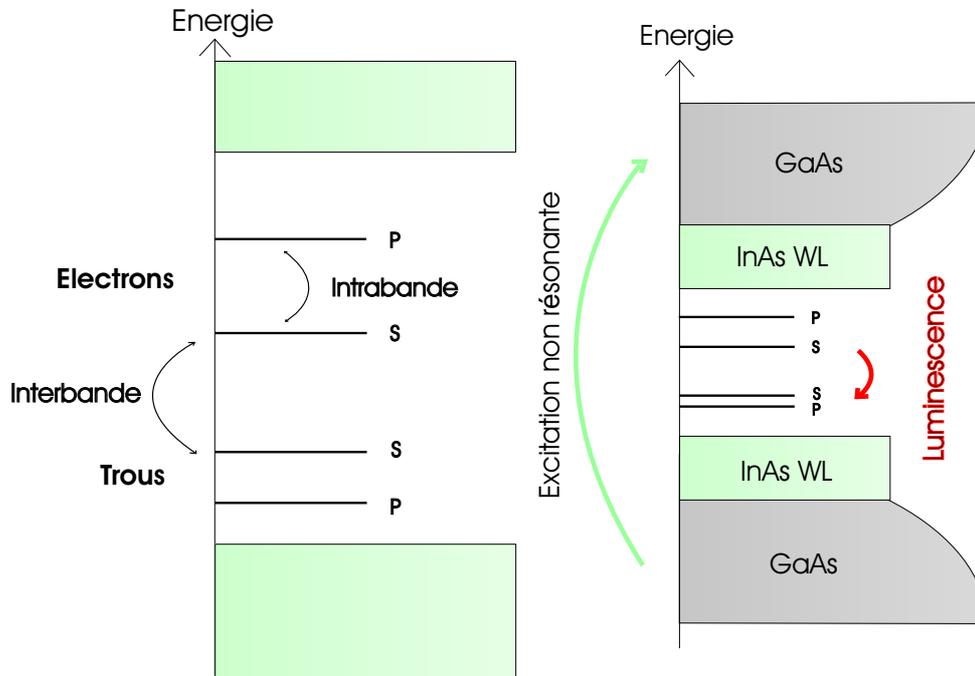


FIG. 1.4.6 – Les transitions optiques dans une boîte quantique et le principe de la photoluminescence sous excitation non-résonante.

Les processus de relaxation non radiative de l'énergie au sein de la boîte sont plus efficaces que l'image des niveaux discrets dans la boîte ne le laisserait penser. Les porteurs relaxent efficacement vers les niveaux les plus bas en énergie en un temps d'une dizaine de picosecondes, si bien qu'on ne voit en général que l'émission provenant de la transition fondamentale, la recombinaison radiative  $p \leftrightarrow p$  étant souvent plus lente que la relaxation non-radiative de l'électron et du trou de l'état  $p$  à l'état  $s$ . L'effet d'inhibition de la relaxation non-radiative des porteurs, initialement prévu théoriquement dans les boîtes quantiques à cause de la discrétisation des niveaux [51], n'est pas très marqué. Cela est du d'une part à l'existence du continuum des états mixtes (montré en figure 1.4.5) par le biais desquels les porteurs peuvent relaxer vers les états impliqués dans la transition fondamentale, et d'autre part au couplage fort des porteurs aux phonons optiques du système, dont le court temps de vie (quelques ps) donne naissance à des processus efficaces de relaxation de l'énergie (c'est la relaxation polaronique étudiée par Olivier Verzelen pendant sa thèse [52]).

#### 1.4.4 L'atome à deux niveaux

Au cours de cette thèse, nous allons nous intéresser principalement à la transition fondamentale.

Alors que le continuum des états mixtes joue un rôle important pour la relaxation de la population et de la cohérence des états excités  $p$  et  $d$ , comme cela avait été montré par les travaux de thèse de Cécile Kammerer [50], la transition fondamentale est, elle, bien isolée de ce continuum par une distance énergétique qui varie de 15 à 30 meV suivant les boîtes (15 meV pour la boîte de la figure 1.4.5).

C'est pourquoi nous n'utilisons, pour analyser la transition radiative fondamentale, qu'un schéma à deux niveaux : le niveau  $|a\rangle$ , qui est le vide d'excitation d'énergie nulle, et le niveau  $|b\rangle$ , qui correspond à la présence d'un électron et d'un trou dans leur niveau  $s$  respectif et qui a une énergie  $\hbar\omega_0$ . Si nous adoptons un point de vue excitonique,  $|a\rangle$  est le vide d'exciton et  $|b\rangle$  est le premier niveau excitonique. Ces deux niveaux sont couplés au champ électromagnétique et plongés dans un environnement complexe dont l'action est exprimée dans le formalisme de la matrice densité par des taux d'amortissement des populations et des cohérences [53]. Si nous nous intéressons à l'action d'une composante monochromatique du champ, la matrice densité de ce système à deux niveaux :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ab}^* & \rho_{bb} \end{pmatrix} \quad (1.4.14)$$

obéit à l'équation d'évolution de Liouville :

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] + i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (1.4.15)$$

où  $H = H_0 - \hat{D}.E \cos(\omega t)$  est l'hamiltonien du système à deux niveaux couplé de façon dipolaire à un champ électromagnétique monochromatique, avec  $\hat{D}$  l'opérateur dipôle, et le terme  $\frac{\partial \rho}{\partial t}$  comprend les termes de relaxation des populations et des cohérences dus à l'émission spontanée et aux processus purement déphasants résultants de l'interaction avec l'environnement de la boîte (autres porteurs proches de la boîte, phonons, champ électromagnétique environnant qui fluctue...) :

$$H = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \Omega_r \cos(\omega t) \\ \Omega_r \cos(\omega t) & 0 \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \hbar\Omega_r = - \langle b | \hat{D}.E | a \rangle \quad (1.4.16)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \begin{pmatrix} \Gamma_s \rho_{aa} & -\Gamma \rho_{ab} \\ -\Gamma \rho_{ab}^* & -\Gamma_s \rho_{bb} \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \Gamma = \Gamma_s + \Gamma_d \quad (1.4.17)$$

où  $\Gamma_s = 1/2T_1$  est le taux d'émission spontanée et  $\Gamma_d = 1/T_2^*$  est le taux de déphasage pur résultant de l'interaction avec l'environnement mis à part le champ électromagnétique. Lorsque  $\Gamma_s$  et  $\Gamma$  sont égaux, nous sommes dans un régime totalement radiatif où le déclin des cohérences est régi par les processus radiatifs,

le temps de décohérence  $T_2$  vaut alors deux fois le temps de vie radiatif :  $T_2 = 2T_1$  et il n'y a pas de déphasage pur ( $\Gamma_d = 0$ ). Dans les autres cas, on a :

$$1/T_2 = 1/2T_1 + 1/T_2^* \quad (1.4.18)$$

En faisant l'approximation quasi-résonante, et à l'ordre 1 en  $\Omega_r$ , la solution aux équations de Bloch optiques s'écrit en régime stationnaire [53] :

$$\rho_{ba} = -\frac{i}{2} \frac{\Omega_r}{\Gamma + i(\omega_0 - \omega)} e^{-i\omega t} \quad d'où \quad \langle \hat{D} \rangle = \Re\left(\frac{-i\Omega_r d}{\Gamma + i(\omega_0 - \omega)} E e^{-i\omega t}\right) \quad (1.4.19)$$

où  $\hat{D} = \begin{pmatrix} 0 & d \\ d & 0 \end{pmatrix}$  est l'opérateur dipôle. Le rayonnement du dipôle est directement relié à la valeur moyenne de  $\hat{D}$  et a donc un spectre qui est lorentzien de largeur  $\Gamma$  :

$$I(\omega) \propto \frac{\Omega_r^2}{\Gamma^2 + (\omega_0 - \omega)^2} E E^* \quad (1.4.20)$$

Dans le cas où nous pouvons exprimer l'action complexe de l'environnement de la boîte quantique sur sa transition fondamentale par des taux de déclin des cohérences et des populations du système à deux niveaux correspondant, nous voyons que la mesure d'une largeur de raie d'absorption au niveau de la transition fondamentale permet d'évaluer le taux  $\Gamma$  et donc le temps de décohérence  $T_2 = \frac{1}{\Gamma}$ .

### 1.4.5 Conclusion

L'image de l'atome à deux niveaux sera notre point de départ pour comprendre les phénomènes de décohérence et de relaxation de spin de l'exciton sur le niveau excitonique fondamental de la boîte, que nous allons étudier au cours de cette thèse.

Le niveau excitonique fondamental, étant isolé du continuum des états mixtes, est a priori protégé des canaux de relaxation de la cohérence induits par la présence de ce continuum. Il est le plus prometteur, parmi les niveaux excitoniques d'une boîte quantique, pour la réalisation d'opérations dans le domaine de l'information quantique.

Au cours de ce manuscrit, nous verrons dans quels cas l'image de l'atome à deux niveaux permet de bien décrire ses propriétés. Nous préciserons également comment cette image doit être complétée afin de comprendre les phénomènes de décohérence à basse température et de relaxation du spin de l'exciton fondamental.



# Chapitre 2

## Aspects expérimentaux

Nous introduisons l'ensemble des techniques expérimentales que nous avons utilisées pour comprendre les phénomènes de cohérence et de dynamique de spin au sein d'une boîte quantique unique InAs/GaAs ou d'un ensemble de boîtes. Ce sont toutes des techniques d'étude de signaux optiques : macro-photoluminescence et micro-photoluminescence mettant en oeuvre une détection de photons à bas bruit, spectroscopie optique par transformée de Fourier, photoluminescence résolue dans le temps et analyse en polarisation de la lumière.

### 2.1 Montages expérimentaux utilisés

#### 2.1.1 Montage de macro-photoluminescence

Nous réalisons des expériences de photoluminescence sur des boîtes quantiques InAs/GaAs, dont les transitions interbandes se situent dans la gamme 880-1100 nm (1.27-1.41 eV), c'est à dire dans le proche infrarouge.

Afin de limiter le rôle des centres non-radiatifs dans les processus de luminescence, nous travaillons à froid en plaçant les échantillons de boîtes quantiques dans un cryostat à circulation d'hélium Oxford Microstat HiRes Mark 2 dont la température peut être ajustée entre 5 et 300 K.

Nous excitons cette luminescence à l'aide d'un laser Titane-Saphir continu (modèle 3900 S de Spectra Physics) accordable de 850 à 1000 nm (1.46 à 1.57 eV), pompé par un Yag doublé (modèle Millennia de Spectra Physics). Notre laser Ti-Saphir peut délivrer jusqu'à une puissance de 500 mW.

Cette lumière excitatrice est guidée à l'aide d'une fibre optique multimode (coeur de diamètre 200  $\mu\text{m}$ ) vers le centre du montage. Ce centre est entièrement monté sur une petite table optique que nous pouvons déplacer devant le cryostat dans les trois directions de l'espace X, Y et Z (voir figure 2.1.1).

En sortie de la fibre d'excitation, la lumière excitatrice, après avoir été

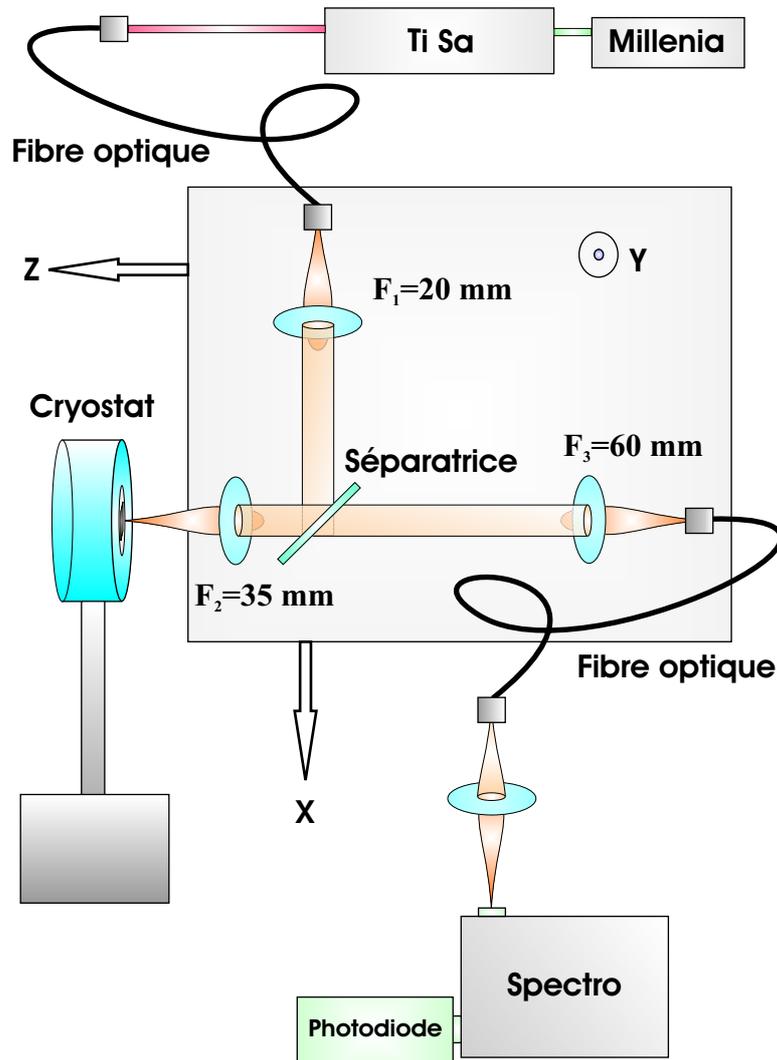


FIG. 2.1.1 – Montage de spectroscopie de macro-photoluminescence sous excitation continue par un laser Titane-Saphir. Le cryostat est fixe et c'est l'ensemble du montage optique, relié par fibres optiques à l'excitation et à la collection, qui est mobile.

réfléchi par une lame semi-transparente, est focalisée sur l'échantillon (spot de  $350 \mu\text{m}$  de diamètre) à l'aide d'une lentille en géométrie confocale : le signal de luminescence émis est collecté par la même lentille et transmis à travers la lame semi-transparente en direction de la partie analyse du montage (voir figure 2.1.1). Le signal  $y$  est recouplé à une fibre optique de collection (multimode de cœur  $550 \mu\text{m}$ ) qui l'achemine vers le spectromètre.

Il s'agit d'un double spectromètre Jobin-Yvon (HDR 1) dont nous n'utilisons que le premier étage : celui-ci contient un réseau de 600 traits/mm blazé à 1000 nm avec lequel nous travaillons dans l'ordre 1. Nous avons optimisé et mesuré la

résolution spectrale de ce spectromètre, qui est de  $130 \mu\text{eV}$  dans notre gamme de longueur d'onde d'analyse.

En sortie du spectromètre, nous utilisons une photodiode à avalanche en Silicium. Il s'agit d'un module de marque Hamamatsu, de la série C 5460, qui est caractérisé par un faible bruit de  $0.2 \text{ pW}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour une surface active circulaire de diamètre 3 mm.

Un signal typique de macro-photoluminescence obtenu sur un ensemble de boîtes quantiques est présenté en figure 2.1.2. Il s'agit d'une raie large inhomogène ( $80 \text{ meV}$ ) correspondant à la distribution des raies de transition fondamentale des boîtes de tailles différentes sondées dans l'ensemble.

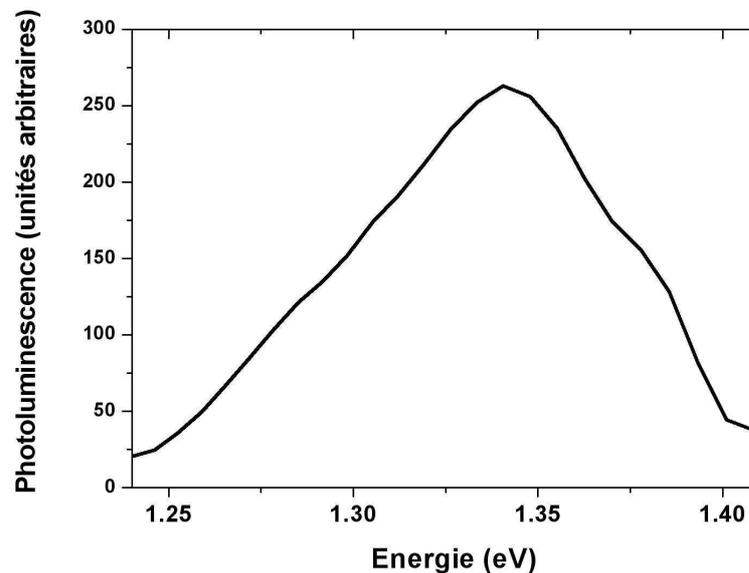


FIG. 2.1.2 – Spectre de photoluminescence non-résonante obtenu avec notre montage de macro-photoluminescence à  $10\text{K}$  sur un ensemble inhomogène de boîtes.

### Analyse en polarisation

Nous effectuons à l'aide de ce montage de macro-photoluminescence des expériences résolues en polarisation. Nous avons placé un polariseur linéaire Glan-Taylor en analyseur devant la fibre optique de collection afin de toujours y faire entrer la même polarisation. Cela nous permet de nous affranchir de la réponse en polarisation de la détection après la fibre. Nous utilisons ensuite une lame d'onde  $\frac{\lambda}{2}$  devant l'analyseur : lorsque l'axe de la lame d'onde et l'axe de l'analyseur sont alignés, nous détectons la composante du signal parallèle aux deux axes. En revanche, lorsque nous tournons la lame d'onde de  $45$  degrés par rapport à l'axe de l'analyseur, c'est la polarisation perpendiculaire à l'axe de l'analyseur qui est analysée.

Avant l'entrée dans la fibre de collection, le seul élément optique dont la réponse est anisotrope en polarisation dans la partie collection de notre montage est la lame semi-transparente en transmission, il nous faut donc la caractériser.

Cette lame présente une transmission  $T$  qui est à peu près moitié moins importante pour la polarisation linéaire X (transmission  $T_X$ ) que pour Y ( $T_Y$ ). Comme nous allons analyser avec ce montage des signaux sur une plage de longueur d'onde qui s'étend de 880 nm à 1  $\mu\text{m}$ , nous avons calibré précisément la réponse anisotrope en polarisation de cette lame sur cette plage tous les vingt nanomètres :

$\lambda$	880nm	900nm	920nm	940nm	960nm	980nm	1000nm
$\frac{T_X}{T_Y}$	$0.483 \pm 0.01$	$0.474 \pm 0.01$	$0.472 \pm 0.01$	$0.471 \pm 0.01$	$0.481 \pm 0.01$	$0.492 \pm 0.01$	$0.506 \pm 0.01$

et nous corrigeons toutes nos mesures par un fit polynomial à l'ordre trois de cette fonction de réponse, qui vaut en moyenne 0.482 :

$$\frac{T_X}{T_Y}(\lambda) = 16.78611 - 0.04692 \lambda + 4.41786 \cdot 10^{-5} \lambda^2 - 1.35417 \cdot 10^{-8} \lambda^3 \quad (2.1.1)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde en nm.

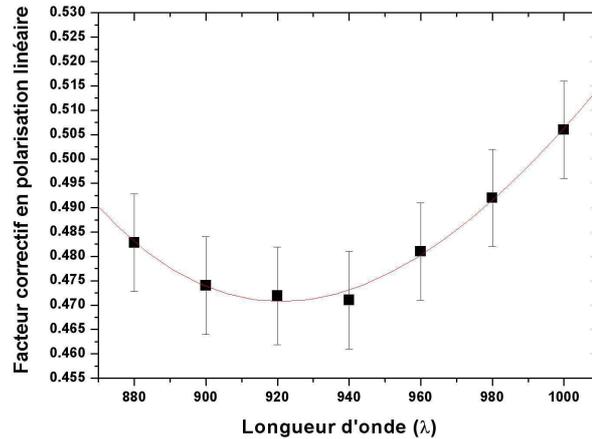


FIG. 2.1.3 – Facteur correctif  $\frac{T_X}{T_Y}(\lambda)$  en polarisation linéaire de la lame semi-transparente utilisée sur notre montage de macro-photoluminescence. En ligne continue, le fit que nous utilisons pour corriger nos données.

Cette calibration précise de la réponse du montage en polarisation en fonction de la longueur d'onde nous permet de mesurer des taux de polarisation linéaire

sur des signaux de luminescence d'un ensemble de boîtes avec une précision de  $\pm 0,75\%$  sur toute la gamme spectrale 880-1000 nm. La valeur de  $\pm 0,75\%$  est évaluée à partir de la dispersion sur plusieurs mesures.

### 2.1.2 Micro-photoluminescence sur boîte quantique unique

Les techniques de spectroscopie sur boîte quantique unique se sont développées à partir du milieu des années 90 grâce à différentes approches permettant d'atteindre la résolution spatiale inférieure au micron que nécessite l'étude de ces objets : gravure de mesas submicroniques [54], dépôt de masques semi-transparents avec des ouvertures submicroniques [11], contrôle de la densité surfacique des boîtes quantiques pendant la croissance [55], ou encore spectroscopie de champ proche optique [56]. La spectroscopie sur boîte unique est accessible aujourd'hui par des expériences variées de photoluminescence, de cathodoluminescence, d'absorption [57] et aussi de photocourant [17].

A l'aide d'un montage de microscopie en géométrie confocale et de détecteurs bas bruit, il est désormais courant d'observer le faible signal d'émission d'une boîte quantique seule (quelques milliers de photons par seconde). A ce niveau de sélectivité spatiale et spectrale, on observe une raie homogène isolée spectralement, trace de la recombinaison radiative de l'exciton dans la boîte présente sous notre spot d'analyse (figure 2.1.4).

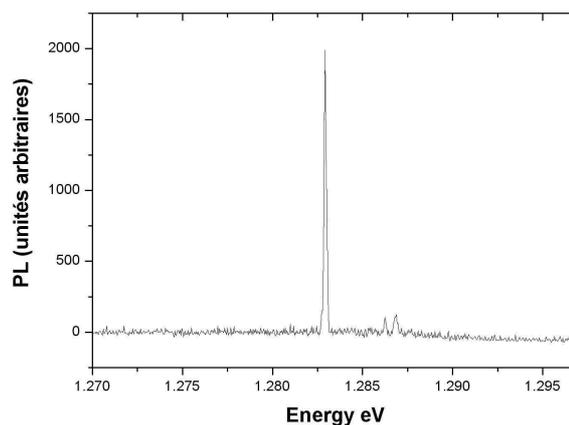


FIG. 2.1.4 – Spectre de photoluminescence sur une boîte quantique isolée.

Le montage de micro-photoluminescence que nous avons utilisé pour étudier les boîtes uniques repose sur un schéma confocal, comme le montage de macro-photoluminescence présenté précédemment, mais nous avons utilisé cette fois un objectif de microscope et la lame séparatrice est utilisée en transmission pour

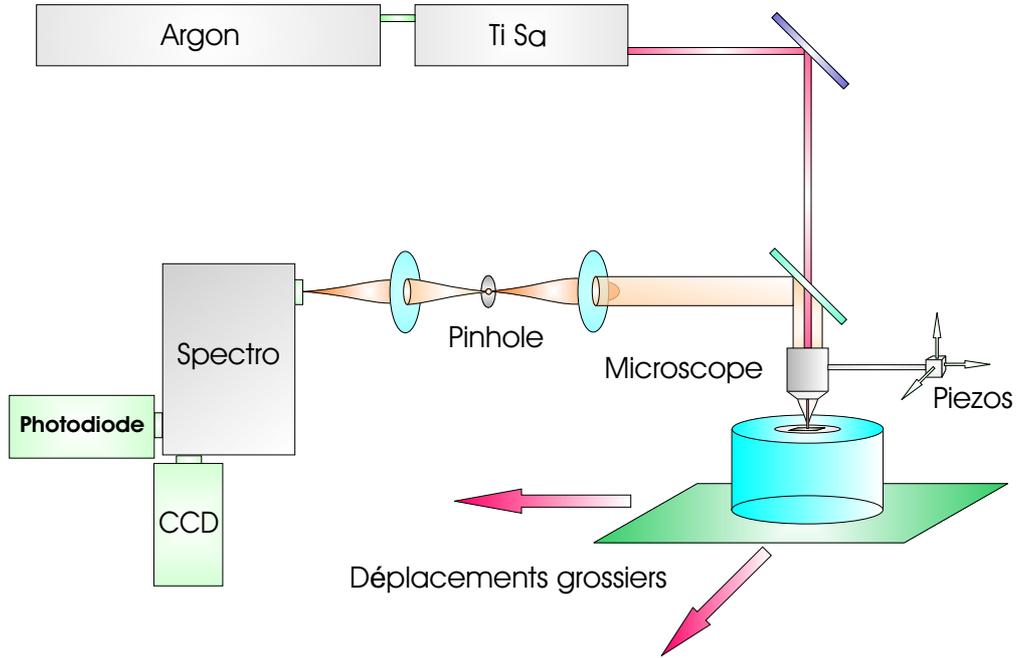


FIG. 2.1.5 – Montage de micro-photoluminescence pour l'étude de boîtes quantiques à basse température. La présence du microscope permet, sur des échantillons microstructurés en surface, l'étude d'une boîte quantique unique.

exciter et en réflexion pour collecter (voir figure 2.1.5). Il n'y a pas de fibres optiques sur ce montage, que ce soit dans la partie excitation ou dans la partie collection.

L'excitation de la luminescence est réalisée à l'aide de trois sources laser distinctes : un laser à HeNe continu à 632 nm (1.96 eV), une diode laser continue à 850 nm (1.46 eV) et un laser continu Titane-Saphir (modèle Tsunami de Spectra Physics) pompé par Argon (modèle Beam Lock de Spectra Physics), accordable de 790 à 1000 nm (1.24 à 1.57 eV) et pouvant fonctionner en blocage de modes délivrant alors des impulsions femtosecondes à une fréquence de 82 MHz.

Nous avons travaillé en géométrie confocale avec un microscope de marque Ealing (Reflecting Objective  $\times 36$ ) qui possède une ouverture numérique  $NA = 0.5$  et une focale de 5.4 mm. Lorsque nous collectons un signal d'émission à  $1 \mu m$  à l'aide de ce microscope, la surface sur laquelle s'effectue la collection dans le plan focal du microscope est donnée par la limite de diffraction, ce qui correspond dans notre cas, compte tenu des aberrations introduites par la fenêtre du cryostat, à une zone d'environ  $2 \mu m$  de diamètre. Les échantillons de boîtes quantiques avec lesquels nous travaillons ont des densités surfaciques de boîtes qui s'étalent de  $10^8$  à  $10^{12}$  boîtes/ $cm^2$ . Avec une densité de  $10^{10}$  boîtes/ $cm^2$ , il y a 100 boîtes par  $\mu m^2$ . Si nous voulons travailler sur un seul de ces nano-objets, il nous faut dans ce cas atteindre une résolution spatiale de l'ordre de 100 nm. Pour aller plus loin

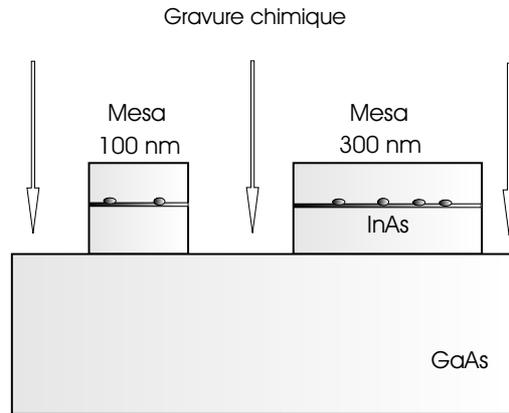


FIG. 2.1.6 – Fabrication des plots microstructurés, les mésas, en surface des échantillons.

que la limite de diffraction en résolution spatiale, nous utilisons en surface des échantillons des plots microstructurés, les mésas, de taille comprise entre 100 nm et 10  $\mu m$ . Ces plots sont obtenus par gravure chimique des échantillons après dépôt de masques lithographiés. La gravure est interrompue après avoir dépassé le plan de boîtes quantiques, ce qui réduit localement la densité surfacique de boîtes (voir figure 2.1.6).

Les mésas, en plus de la résolution spatiale qu'elles permettent d'obtenir, assurent une extraction efficace du signal de luminescence des boîtes quantiques (figure 2.1.7). En revanche, elles peuvent modifier les propriétés d'émission des boîtes, modifications que nous étudierons en détail au chapitre IV.

Associés à notre montage de microscopie confocale en champ lointain (figure 2.1.5) qui est d'une stabilité mécanique submicronique, les mésas nous permettent de travailler sur une même boîte unique pendant 10 heures d'affilée, soit une journée complète de manipulations. Cette grande stabilité mécanique est assurée par le modèle de cryostat Oxford "Low Movement" que nous utilisons, qui permet un maintien submicronique des positionnements après que le premier régime transitoire de stabilisation de température est passé, ce qui dure généralement deux heures.

Enfin pour améliorer le rapport signal sur bruit lors de nos expériences sur boîte unique, nous positionnons dans la détection un pinhole de 100  $\mu m$  de diamètre que nous conjuguons suivant le grandissement de 100 de notre montage avec une zone de 1  $\mu m$  sur l'échantillon (figure 2.1.5).

Après le pinhole, le signal collecté est envoyé dans un simple spectromètre. Nous utilisons sur ce montage un spectromètre Jobin-Yvon (HR 320) de 32 cm de focale avec un réseau de 1200 traits/mm blazé à 750 nm. Nous avons optimisé et mesuré la résolution spectrale de ce spectromètre, qui est de 0.1 nm dans notre gamme de longueur d'onde d'analyse, ce qui correspond à 140  $\mu eV$ .

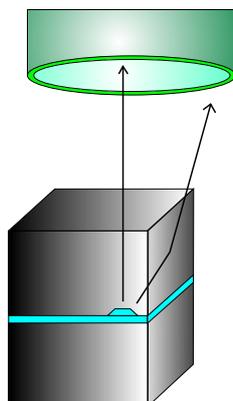


FIG. 2.1.7 – La géométrie des mésas permet de collecter également le signal réfracté par les bords, ce qui permet d’extraire efficacement le signal dans les coins de la méssa.

Le signal de photoluminescence d’une boîte quantique unique est faible (quelques milliers de photons par seconde). Nous travaillons pour l’étudier avec deux détecteurs très bas bruit sur les deux voies en sortie du spectromètre.

#### Photodiode à avalanche

Le premier de ces détecteurs est une photodiode à avalanche en silicium caractérisée par un bruit de 20 coups par seconde. La zone active de ce détecteur est petite (diamètre de 0.15 mm), correspondant en sortie du spectromètre à une fenêtre spectrale de 1 meV pour une fente de sortie totalement ouverte. La photodiode à avalanche est un détecteur monocanal et l’acquisition du spectre se fait à l’aide d’un programme qui contrôle la rotation du réseau de diffraction du spectromètre.

#### Caméra CCD

Le second détecteur est une barette CCD en silicium montée entièrement par nos services techniques (pilotés par David Darson pour l’électronique et Pascal Morfin pour la mécanique) dans un cryostat à azote liquide. Cette barette est illuminée par l’arrière, une technique qui permet d’atteindre un rendement quantique de 85 % car le signal ne traverse plus les électrodes qui sont placées à l’avant sur ce type de composant. Le bruit d’obscurité sur cette barette passe de 2000 à  $10^{-6}$  coups/s de 293 à 175 K. A 175 K, il est négligeable devant le bruit de lecture du composant, qui est de 10 coups quelque soit le temps de pose.

Sur l’image CCD présentée en figure 2.1.8, Y est une direction spatiale sur l’échantillon alors que la direction horizontale correspond à  $\lambda$  car le réseau de diffraction du spectromètre disperse le signal d’émission filtré par le pinhole sur les 5 cm d’extension du composant CCD. La distance à laquelle nous plaçons le composant à la sortie du spectromètre définit le compromis que nous faisons entre la plage spectrale  $\Delta\lambda$  que nous voulons visualiser sur toute l’extension

du composant et la plage spectrale  $\delta\lambda$  à laquelle correspond chaque pixel de la barette, qui détermine l'échantillonnage spectral que nous faisons de notre signal. Nous avons positionné notre barette de façon à avoir  $\Delta\lambda = 25$  nm (environ 40 meV) et  $\delta\lambda = 45$   $\mu$ eV. De cette façon, la fonction de réponse est échantillonnée sur une petite dizaine de pixels.

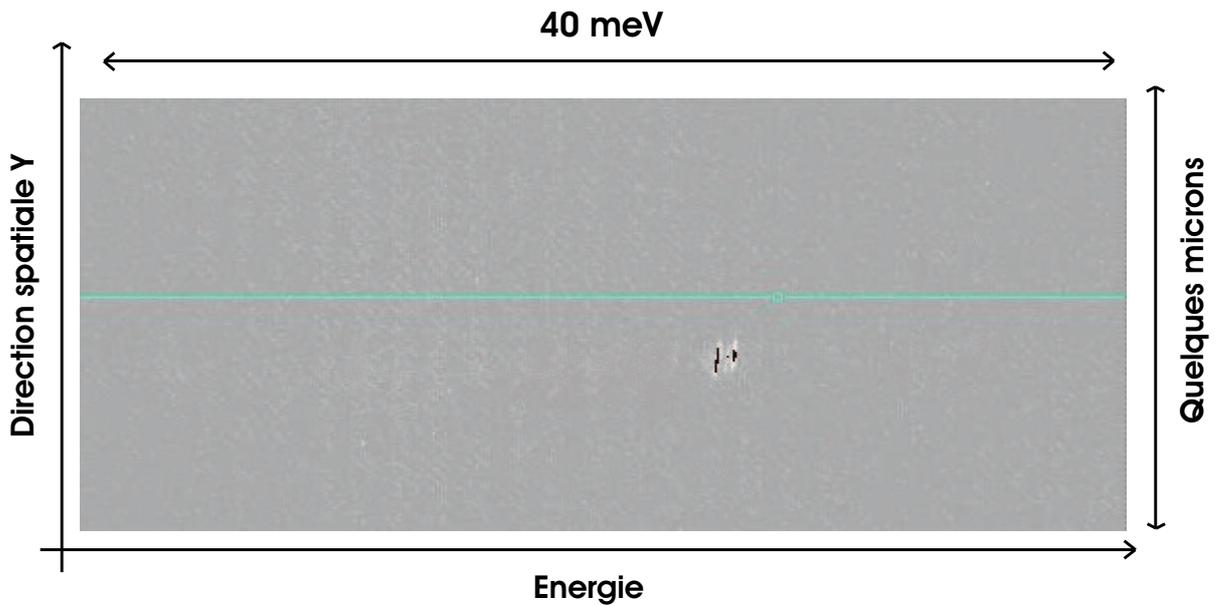


FIG. 2.1.8 – Image CCD de l'émission de deux boîtes quantiques isolées spectralement vers 1.38 eV.

### Correction des images CCD

Si elle permet d'excellents rendements quantiques, la technologie d'illumination par l'arrière a en revanche un effet secondaire néfaste. Le composant de silicium dans lequel se produit l'effet photoélectrique à la base de la détection est fabriquée de la façon suivante : une croissance de silicium de haute qualité est faite sur un substrat puis les contacts nécessaires à la technologie CCD sont déposés en fin de croissance. Le substrat est ensuite retourné et l'ensemble aminci par l'arrière jusqu'à une épaisseur de 1  $\mu$ m : le chip est finalement illuminé par l'arrière en situation d'utilisation, ce qui évite d'être gêné optiquement par les contacts.

Malheureusement, la phase d'amincissement est imparfaite et il existe des fluctuations d'épaisseur de pixel à pixel à la surface du composant qui donnent des franges d'interférence au voisinage de 1  $\mu$ m. Dans le proche infrarouge en effet, spécialement autour de  $\lambda=1$   $\mu$ m, la lumière qui tombe par l'arrière sur le composant le traverse en partie et est réfléchi sur sa face avant, l'amenant à interférer avec elle-même au sein du composant même. Cette interférence, à cause des fluctuations d'épaisseur, se fait de manière constructive ou destructive en différentes positions de la barette. La barette, à travers l'effet photoélectrique

qui dépend de la puissance d'illumination, voit donc de manière effective une intensité de signal qui dépend de la position, suivant les irrégularités d'épaisseur. Si nous éclairons en lumière blanche la barrette CCD à travers le spectromètre par exemple, nous observons des franges, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.1.9.

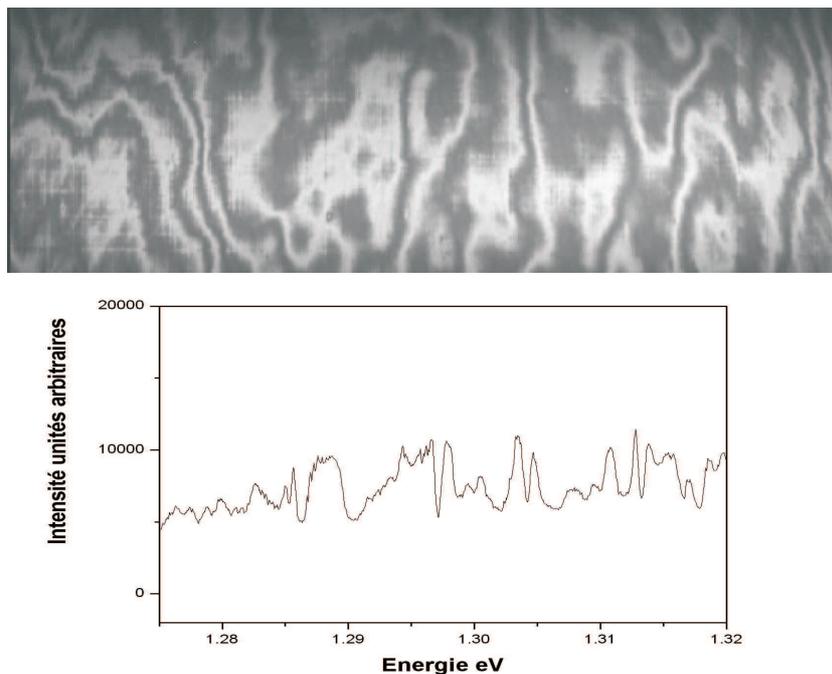


FIG. 2.1.9 – Exemple de champ blanc imagé sur la barrette CCD, faisant apparaître les franges d'interférence dues aux inhomogénéités d'épaisseur. En bas, le profil spectral du champ blanc, qui correspond à une sommation verticale sur plusieurs lignes de pixels.

Afin de corriger ce défaut, nous avons établi une procédure de traitement des images obtenues par cette caméra CCD : si nous représentons une image CCD par une matrice  $I(m,n)$  de  $1024 \times 525$  pixels, nous commençons dans notre procédure par réaliser un "champ noir" qui correspond à l'image  $I_{noir}$  obtenue par la CCD lorsque son shutter est fermé, cette image ne résulte que du bruit de lecture et du bruit d'obscurité (dark noise). Nous réalisons ensuite un "champ blanc"  $I_{blanc}$  qui est l'image obtenue par la CCD sous illumination à la lampe blanche à travers le spectromètre : ce "champ blanc" nous donne le profil des franges dues aux interférences. Enfin à partir de l'image brute  $I_{brute}$  obtenue à la CCD lorsque le signal de photoluminescence provenant de l'échantillon est présent, nous effectuons l'opération suivante pixel par pixel

$$I(m, n) = \frac{I_{brute}(m, n) - I_{noir}(m, n)}{I_{blanc}(m, n) - I_{noir}(m, n)} \quad (2.1.2)$$

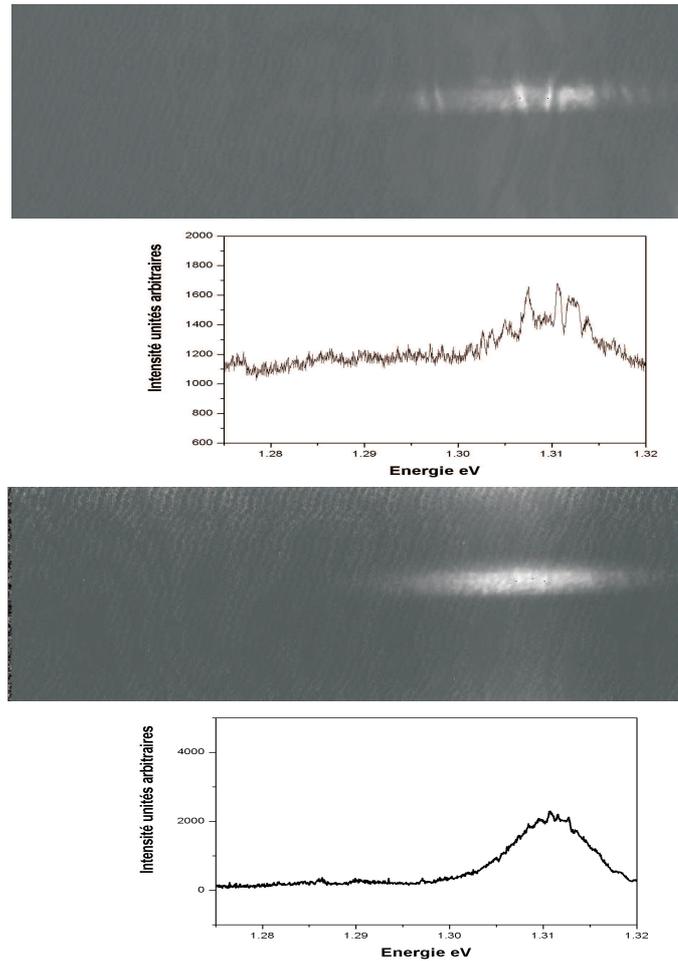


FIG. 2.1.10 – Exemple de correction d'images sur la caméra CCD. Il s'agit ici de l'image dispersée spectralement d'une impulsion femtosecondes issue d'un laser Titane :Saphir.

Nous montrons en figure 2.1.10 un exemple d'une telle correction sur un signal large spectralement, à savoir une impulsion femtoseconde en sortie de notre laser Titane :Saphir, où l'on voit après correction le spectre lisse de l'impulsion.

Finalement la photodiode à avalanche et la caméra CCD sont deux détecteurs complémentaires pour nos études : la photodiode est un détecteur monocanal rapide avec un bruit de 20 coups/s. La camera CCD est elle un détecteur multicanal lent qui permet d'obtenir un rapport signal sur bruit plus grand en effectuant des poses longues, puisque le seul bruit électronique, celui de lecture à la fin de la pose, est indépendant de la durée de la pose. Cette CCD permet en une acquisition de visualiser spectralement une plage d'une quarantaine de meV mais en revanche, chaque image réalisée à la CCD nécessite de vider tous les pixels (5 s), d'effectuer la pose (1 minute en moyenne) puis de lire la matrice (10 s). Il nous faut donc attendre beaucoup entre chaque acquisition.

### Analyse en polarisation sur boîte unique

Nous avons réalisé au cours de cette thèse de nombreuses études en polarisation de l'émission de boîtes quantiques uniques. Bien que nous obtenions une stabilité submicronique au bout de deux heures sur notre montage, les instabilités résiduelles limitent notre précision sur les mesures de taux de polarisation sur boîte unique à  $\pm 5\%$ .

Comme dans le montage de macro-photoluminescence, nous nous sommes affranchis de la réponse en polarisation du spectromètre en plaçant à son entrée un analyseur linéaire précédé d'une lame demi-onde. La réponse en polarisation linéaire du reste du montage a été calibrée mais cette fois uniquement à une longueur d'onde centrale de 940 nm : nous avons trouvé un facteur 0.625 entre la transmission de la polarisation linéaire X et celle de la polarisation Y. Nous avons négligé les variations en longueur d'onde de ce facteur, du type de celles rapportées en figure 2.1.3, car la prise en compte de ces variations ne permet pas de descendre en dessous de  $\pm 5\%$  de précision sur nos mesures de taux de polarisation sur boîte unique.

### Spectroscopie par transformée de Fourier

Nous avons aussi étudié au cours de cette thèse sur des boîtes quantiques uniques des largeurs de raies de photoluminescence qui ne sont pas résolues spectralement par le système précédent (spectromètre+CCD). Afin de mesurer ces largeurs, nous utilisons une technique complémentaire de spectroscopie : la spectroscopie par transformée de Fourier. Elle nous permet d'obtenir une résolution de  $0.5 \mu eV$ .

Notre montage de spectroscopie par transformée de Fourier contient dans son chemin de détection un interféromètre de Michelson qui permet de faire interférer le signal, collecté sur une boîte unique, avec lui-même (figure 2.1.11). Cet interféromètre est constitué d'une lame séparatrice et de deux coins de cube définissant les deux bras : un des coins de cube est monté sur une ligne à retard de pas  $d$  égal à 100 nm, ce qui correspond à un retard équivalent de  $2 * \frac{d}{c} = 0.66$  fs ; l'autre coin de cube est fixe.

Si nous appelons  $E(t)$  le champ électrique se propageant dans le bras fixe de l'interféromètre, l'intensité détectée à  $t_0$  en sortie de l'interféromètre est :

$$I(\tau) = \frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} |E(t) + E(t - \tau)|^2 dt \quad (2.1.3)$$

où  $\tau$  est le retard pris par le champ dans le bras mobile par rapport au champ dans le bras fixe et  $T$  est le temps d'intégration du détecteur. Si les intensités dans les deux bras sont égales, cette expression s'écrit :

$$I(\tau) = \frac{2}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} E(t)E^*(t)dt + 2\Re\left(\frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} E(t)E^*(t - \tau)dt\right) \quad (2.1.4)$$

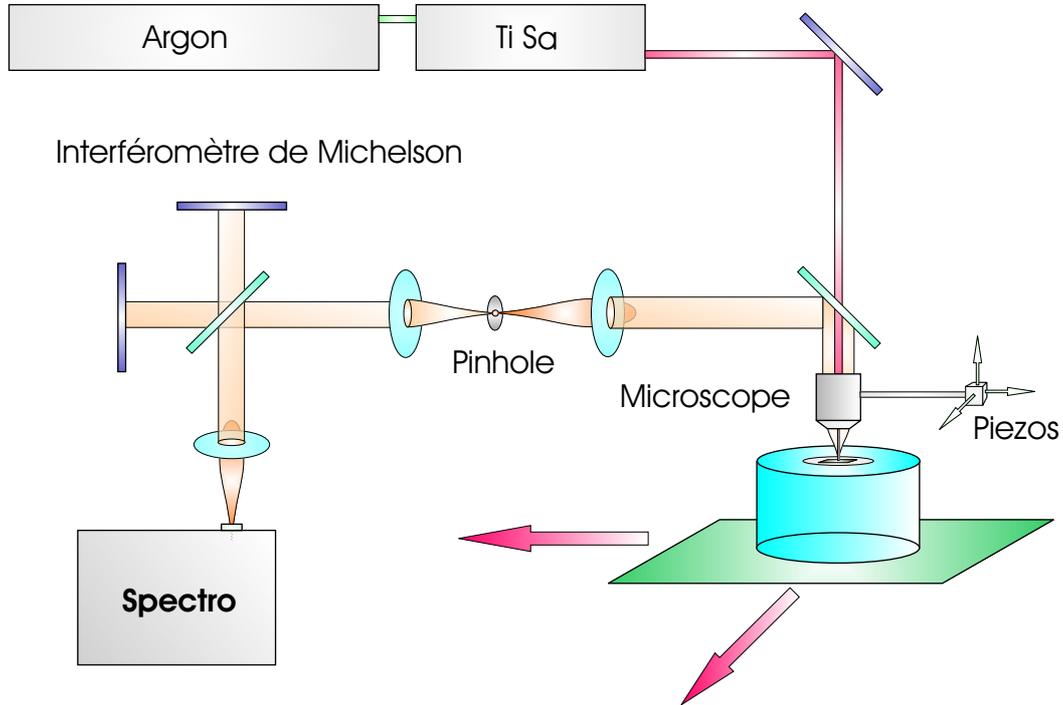


FIG. 2.1.11 – Montage de micro-photoluminescence dans lequel a été inséré un interféromètre de Michelson pour réaliser de la spectroscopie par transformée de Fourier.

ce qui en posant :

$$\gamma(\tau) = \frac{\Re\left(\frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} E(t)E^*(t-\tau)dt\right)}{\frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} E(t)E^*(t)dt} \quad (2.1.5)$$

et :

$$I_0 = \frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} E(t)E^*(t)dt \quad (2.1.6)$$

permet d'exprimer l'intensité en sortie de l'interféromètre sous la forme :

$$I(\tau) = 2I_0(1 + \gamma(\tau)) \quad (2.1.7)$$

Si nous considérons maintenant le cas d'un champ centré spectralement sur  $\omega_0$  et que nous l'écrivons  $E(t) = A(t)e^{i\omega_0 t}$ , nous pouvons réécrire  $\gamma(\tau)$  :

$$\gamma(\tau) = \frac{1}{I_0} \Re\left(e^{i\omega_0 \tau} \frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} A(t)A^*(t-\tau)dt\right) \quad (2.1.8)$$

Dans le cas de l'émission de photons par une boîte quantique unique, le train d'onde  $A(t)$  dure environ 1 ns, c'est à dire le temps de vie radiatif. Or le temps

d'intégration de notre détecteur est ici de 10 ms. Nous pouvons donc passer à la limite à l'infini :

$$\gamma(\tau) = \frac{1}{I_0} \Re \left( e^{i\omega_0\tau} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} A(t) A^*(t-\tau) dt \right) \quad (2.1.9)$$

Or, d'après le théorème de Wiener-Khintchine, la fonction d'autocorrélation est la transformée de Fourier de la densité spectrale [58], c'est-à-dire :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} A(t) A^*(t-\tau) dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |A(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} d\omega \quad (2.1.10)$$

ce qui appliqué à notre cas donne :

$$I(\tau) = 2I_0 \left[ 1 + \frac{1}{I_0} \Re \left( e^{i\omega_0\tau} TF(|A(\omega)|^2) \right) \right] \quad (2.1.11)$$

Dans le cas d'un profil spectral symétrique pour le champ, c'est à dire dans le cas où  $|A(\omega)|^2 = |A(-\omega)|^2$ , la transformée de Fourier de la densité spectrale est réelle et alors :

$$I(\tau) = 2I_0 \left[ 1 + \cos(\omega_0\tau) TF \left( \frac{|A(\omega)|^2}{I_0} \right) \right] \quad (2.1.12)$$

Finalement, si nous définissons le contraste  $C(\tau)$  de l'interférence dans l'expression de l'intensité en sortie de l'interféromètre par :

$$I(\tau) = 2I_0 \left[ 1 + C(\tau) \cos \omega_0\tau \right] \quad (2.1.13)$$

nous voyons que le contraste est la transformée de Fourier de la densité spectrale du champ.

$$C(\tau) = \frac{1}{I_0} \int_{-\infty}^{+\infty} |A(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} d\omega \quad (2.1.14)$$

Inversement, la transformée de Fourier du contraste permet d'accéder au profil spectral  $|A(\omega)|^2$  du champ.

Nous observons souvent des profils de raie lorentziens pour l'émission des boîtes quantiques uniques. Nous montrons en figure 2.1.12 un exemple d'interférogramme dans le cas de ce profil lorentzien.

Le profil lorentzien est défini par une densité spectrale de la forme :

$$|A(\omega)|^2 \propto \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2/4\hbar^2} \quad (2.1.15)$$

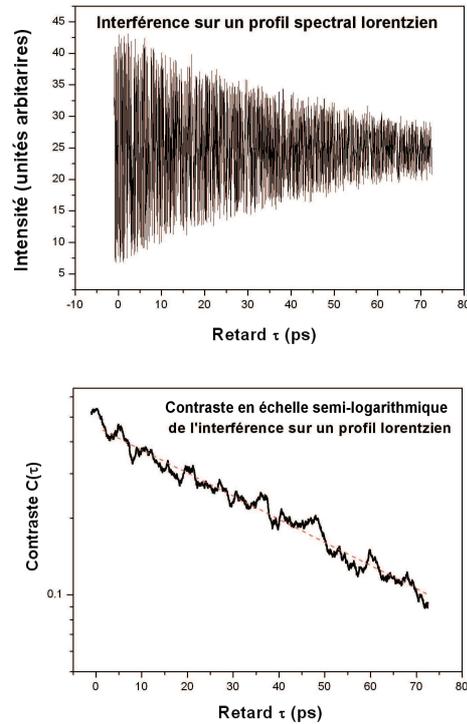


FIG. 2.1.12 – Allure des interférences générées par l'interféromètre de Michelson sur un profil spectral lorentzien rencontré sur une boîte unique. Le contraste est tracé en échelle semi-logarithmique.

dont la largeur  $\Gamma$  à mi-hauteur en énergie est reliée à la constante de temps  $T$  par  $\Gamma = \hbar\Delta\omega = 2\hbar/T$ .

La transformée de Fourier d'une lorentzienne étant une exponentielle, le contraste obtenu dans l'interféromètre sur un tel profil est exponentiel et s'exprime également en fonction de  $T$  :

$$C(\tau) \propto \exp(-|\tau|/T) \quad (2.1.16)$$

La technique de spectroscopie par transformée de Fourier nous permet d'améliorer considérablement notre résolution spectrale (nous atteignons une résolution de  $0.5 \mu eV$ , fixée par le retard maximal que l'on peut créer entre les deux bras de l'interféromètre, qui est de  $1.3 \text{ ns}$ ), mais elle peut aussi, le cas échéant, permettre de faire la distinction entre différents types de profil de raie rencontrés.

### 2.1.3 Micro-photoluminescence résolue dans le temps

Enfin, nous avons effectué des expériences sur boîte unique de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation. Ces expériences ont été menées en collaboration avec Jean-Phillipe Poizat et Christophe Couteau du Laboratoire de Spectrométrie Physique de Grenoble.

Nous décrivons ici sommairement le montage expérimental utilisé à Grenoble.

Il s'agit d'un montage très proche sur le principe du montage de micro-photoluminescence que nous avons décrit précédemment : un microscope en géométrie confocale utilisé avec un cryostat à distance de travail petite [59]. L'excitation est réalisée à l'aide d'un laser Titane-Saphir (modèle Tsunami) avec des impulsions de 1 ps et un taux de répétition de 82 MHz.

La principale différence avec notre montage à Paris réside dans la partie détection. Cette détection est constituée d'un module de corrélation de comptage de photon monté en START-STOP inversé. Ce module repose sur une photodiode à avalanche en Silicium et une diode Silicium de déclenchement : il permet une résolution temporelle limitée uniquement par le "jitter" de la photodiode à avalanche, qui est de 350 ps.

Dans nos expériences résolues dans le temps, nous avons toujours déconvolué cette réponse temporelle du module des signaux bruts.

L'analyse en polarisation sur le montage de Grenoble est réalisée de la même manière que précédemment : un polariseur linéaire Glan-Taylor précédé d'une lame demi-onde devant le spectromètre. La barre d'erreur pour la mesure d'un taux de polarisation linéaire sur la luminescence d'une boîte unique est similaire à celle observée sur notre montage à Paris, ie  $\pm 5\%$ .

## 2.2 Description des échantillons utilisés

Nous décrivons ici 5 échantillons sur lesquels nous présentons des études dans ce manuscrit. Nous les avons obtenus dans le cadre de collaborations : avec Jean-Michel Gérard au CEA de Grenoble, qui nous a fourni des échantillons épitaxiés au CNET de Bagnoux, et avec l'équipe de Pierre Petroff au Materials Department de l'Université de Santa Barbara pour des échantillons plus récents.

Nous avons travaillé pour la spectroscopie sur un ensemble de boîtes quantiques avec un échantillon à multiplan de boîtes quantiques. La spectroscopie sur boîte unique a été faite sur quatre autres échantillons à monoplan de boîtes, microstructurés en surface à l'aide de mésas.

L'échantillon à multiplan de boîtes porte le numéro de croissance 27Q73 et sera nommé dans la suite de ce manuscrit échantillon E. L'échantillon E a été fabriqué par Jean-Michel Gérard au CNET de Bagnoux en 1997 par épitaxie par jets moléculaires. Il contient 40 plans de boîtes empilés verticalement et séparés à

chaque fois par 30 nm de GaAs (pas de couplage quantique entre boîtes de plans différents). Chaque plan présente une densité surfacique de boîtes de  $3 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2$ . Nous avons présenté en figure 2.1.2 un spectre de macro-photoluminescence excitée à 1.46 eV à 10 K sur cet échantillon E. Nous y constatons que la distribution de l'émission des boîtes est large (80 meV) et centrée à 1.35 eV (950 nm). A 300 K, ces mêmes boîtes émettent autour de 1.2 eV ( $1\mu\text{m}$ ).

Les wafers dont sont issus les 4 échantillons de boîtes uniques possèdent tous un gradient d'épaisseur d'InAs déposé. Sur chaque wafer de départ, il y a une zone où il n'y a qu'une mince couche d'InAs qui n'a pas encore transité et ne comporte pas de boîtes : c'est la zone 2D. De l'autre côté, une zone où la croissance a eu lieu après dépôt au-delà de l'épaisseur critique, donnant naissance à une densité de boîtes importante de l'ordre de  $10^{11}/\text{cm}^2$ , c'est la zone dense ou zone 3D. A la jonction de ces deux régions se trouve une zone frontière, d'épaisseur proche de l'épaisseur critique, au niveau de laquelle la couche d'InAs est au seuil de transition 2D-3D : la densité de boîtes y est non-nulle mais faible, entre  $10^7$  et  $10^{10}$  boîtes/ $\text{cm}^2$  (voir figure 2.2.13).

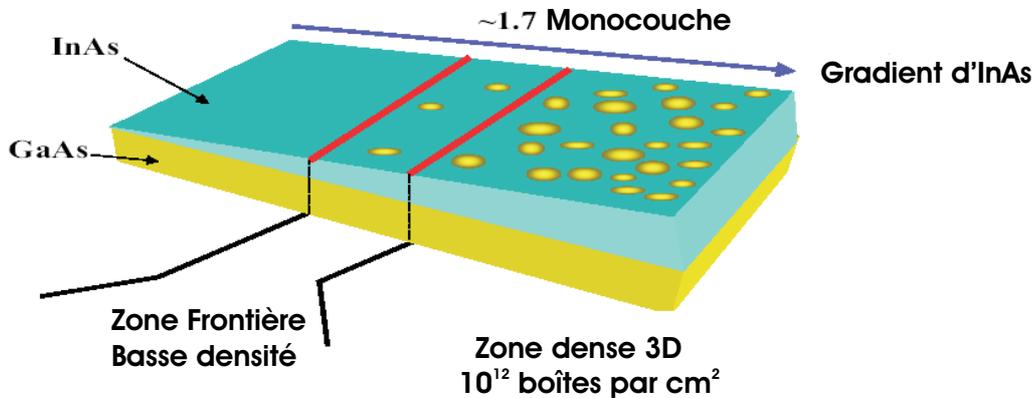


FIG. 2.2.13 – Wafer à gradient d'épaisseur d'InAs. Le passage est continu entre une zone sans boîtes quantiques et une zone à forte densité de boîtes. Dans la zone de transition (de quelques millimètres d'extension sur nos échantillons), la densité de boîtes est faible.

Parmi ces 4 échantillons, deux sont des échantillons de zone frontière : l'échantillon "69B26 Zone Frontière", nommé ci-après échantillon A, et l'échantillon "031005A Zone Frontière", nommé ci-après échantillon C. Les deux autres échantillons sont de type zone 3D : l'échantillon "375Y 3D", nommé après échantillon B, et l'échantillon "031005A 3D", nommé après échantillon D. Ces

quatre échantillons sont microstructurés en surface à l'aide de mésas d'arête allant de 100 nm à 10  $\mu$ m. Ces mésas nous permettent sur chacun de ces échantillons de travailler à l'échelle de la boîte unique.

L'échantillon A, de nom de croissance 69B26, a été fabriqué au CNET à Bagneux par Jean-Michel Gérard par épitaxie par jets moléculaires sur un substrat de GaAs et présente une structure particulière : le plan de boîtes est placé entre deux couches de GaAs d'épaisseur 50 nm puis deux couches de  $Ga_{0.75}Al_{0.25}As$  de 14 nm puis deux couches finalement de GaAs de 2 nm. Les deux couches contenant de l'aluminium servent à créer autour du plan de boîtes deux barrières de potentiel qui limitent la diffusion des porteurs loin de la zone des boîtes. Cette hétérostructure est séparée du substrat par 1  $\mu$ m de couche d'arrêt d'AlAs. A la suite de cette croissance épitaxiée, la structure de l'échantillon a été modifiée afin d'améliorer la collection du signal de luminescence. La surface supérieure de l'échantillon a été recouverte de 200 nm d'or puis l'échantillon retourné et collé à l'envers sur un substrat de transfert en silicium. Le substrat de GaAs et la couche d'arrêt d'AlAs ont ensuite été retirés par attaque chimique jusqu'à une distance faible des boîtes. Au stade final, le plan de boîtes se trouve au dessus d'un miroir en Au, qui permet de rediriger vers le haut la partie habituellement perdue de la luminescence des boîtes. Cet échantillon est donc optimisé tant au niveau de l'excitation des boîtes par les porteurs, qui ne diffusent pas trop loin, qu'au niveau de la collection du signal. Il présente une densité de boîtes moyenne de  $10^9$  boîtes/cm<sup>2</sup>. La distribution du nombre de boîtes en fonction de leur énergie d'émission à 10 K est assez plate : elle commence à 1.326 eV (935 nm) et termine à 1.41 eV (880 nm) avec un pic vers 1.37 eV (905 nm). La couche de mouillage luminesce à 1.42 eV (874 nm).

L'échantillon B, a été également fabriqué au CNET par Jean-Michel Gérard et toujours par épitaxie par jets moléculaires, à la même période que l'échantillon A. Ces deux échantillons ne proviennent pas du même wafer. L'échantillon B est un échantillon de zone 3 D, il possède une densité de boîtes de  $10^{12}$  boîtes/cm<sup>2</sup>. La distribution d'émission à 10 K des boîtes est piquée à 1.305 eV (950 nm) et s'étale de 1.265 eV (980 nm) à 1.33 eV (930 nm).

Les échantillons C et D ont été fabriqués à Santa Barbara par épitaxie par jets moléculaires. Ils proviennent du même wafer, le 031005A. L'échantillon C est un morceau du wafer découpé dans la zone frontière. L'échantillon D est un morceau découpé dans la zone 3 D et possède une densité de boîtes de  $10^{12}$  boîtes/cm<sup>2</sup>. Ce wafer 031005A est un wafer de boîtes quantiques dans une microcavité constituée de deux miroirs de Bragg, dont la croissance a été réalisée par Antonio Badolato. L'accord entre l'énergie d'émission des boîtes et l'énergie du mode de cavité ayant échoué, nous avons recyclé ce wafer grâce à l'aide de Jean-Michel Gérard qui a retiré le miroir de Bragg supérieur de la cavité afin de nous permettre de travailler directement sur les boîtes quantiques se trouvant à l'intérieur. La distribution des boîtes en fonction de leur énergie d'émission à 10 K est large sur ce wafer : elle

début à 1.24 eV (1  $\mu\text{m}$ ) (du moins c'est ici que nous la voyons débiter puisque notre détecteur coupe à 1  $\mu\text{m}$ ) et se termine à 1.305 eV (950 nm). Le pic de la distribution est vu à 1.27 eV (975 nm) et la distribution s'aplatit lorsque nous passons de la zone 3 D, ie de l'échantillon D, à la zone frontière, ie à l'échantillon C. La couche de mouillage luminesce à 1.45 eV (855 nm).

Nous récapitulons dans le tableau suivant les caractéristiques des 5 échantillons de boîtes quantiques étudiés :

Echantillon	Laboratoire	Wafer	Densité de boîtes/ $\text{cm}^2$
A	CNET	69B26	$10^7$ à $10^{10}$ . Zone frontière.
B	CNET	375 Y	$10^{12}$ . Zone 3D.
C	Santa Barbara	031005A	$10^7$ à $10^{10}$ . Zone frontière.
D	Santa Barbara	031005A	$10^{12}$ . Zone 3D.
E	CNET	27Q73	$3 \cdot 10^{11}$ par plan. Multiplan.



# Chapitre 3

## Décohérence à basse température

Au début des recherches sur les boîtes quantiques, la nature discrète des niveaux d'énergie pour les porteurs dans ces nano-objets a laissé espérer une inhibition de la relaxation de leur population et de leur cohérence [51]. La représentation, associée à ces premiers espoirs, d'une boîte quantique comme un atome artificiel en matière condensée, s'est ensuite montrée insuffisante à plusieurs égards : premièrement, la relaxation de la population et de la cohérence des états excités d'une boîte n'est en réalité pas inhibée et de plus les spectres d'excitation de la photoluminescence détectée au niveau de la transition fondamentale ne peuvent pas être modélisés dans le cadre de cette représentation. Ces différents échecs du modèle de l'atome artificiel proviennent du couplage important de la boîte avec son environnement.

En ce qui concerne la relaxation de la cohérence des états excités, les travaux de Cécile Kammerer ont montré qu'elle s'explique par la présence du continuum des états mixtes [49] (introduit au chapitre I paragraphe 1.4.2) auquel les états excités sont superposés (chapitre I figure 1.4.5). La présence de ce continuum, qui est également responsable de l'allure des spectres d'excitation de la photoluminescence au niveau de la transition fondamentale, traduit un couplage important de la boîte quantique avec la couche de mouillage 2D sur laquelle elle repose [50].

Pour ce qui est du couplage de la boîte avec le réseau cristallin, les travaux de Hameau et Verzelen ont mis en évidence, par des expériences d'absorption intrabande et leur compréhension théorique, que l'électron dans une boîte InAs/GaAs est en couplage fort avec les modes de phonons optiques [14, 52]. C'est le temps de vie fini de la composante phonon optique des polarons résultant de ce couplage qui permet de comprendre la relaxation de la population des états excités dans une boîte quantique.

Dans les boîtes uniques II-VI de CdTe/ZnTe, Besombes a ensuite montré que le couplage avec les phonons acoustiques est également essentiel. L'excitation fondamentale dans une telle boîte est en réalité une entité mixte composée de

l'exciton habillé par un nuage de phonons acoustiques [60]. Dans le spectre d'émission au niveau de la transition fondamentale, le caractère mixte de cette excitation se traduit par l'apparition d'ailes de phonons acoustiques autour d'une "raie à zéro phonon" centrale (voir figure 3.1.1).

Au commencement de nos travaux, seul un indice de l'existence de cet effet dans les boîtes quantiques InAs/GaAs avait été fourni par des expériences de mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes [24]. Alors qu'il s'agissait d'un des systèmes les plus étudiés, aucune preuve directe n'avait été apportée sur boîte unique InAs/GaAs. Nous avons voulu combler ce manque et savoir si cet effet était intrinsèque aux boîtes quantiques de semiconducteurs ou dépendait des matériaux utilisés pour la fabrication des boîtes.

Dans le paragraphe 3.1 de ce chapitre, nous présentons la première mise en évidence des ailes de phonons acoustiques sur une boîte quantique unique InAs/GaAs [61]. Nous comparons, avec un accord très satisfaisant, théorie et expérience et nous expliquons pourquoi ces ailes n'ont pas été mises en évidence plus tôt.

Le couplage de la boîte quantique au réseau cristallin (le couplage fort aux phonons optiques et l'habillage par les phonons acoustiques de l'exciton fondamental) ne suffit cependant pas à expliquer la totalité des processus d'élargissement de la transition fondamentale, notamment la largeur à température nulle de la raie à zéro phonon et son évolution avec la température entre 0 et 50 K : aucune vision complète de la décohérence de l'exciton dans une boîte quantique auto-assemblée n'a à ce jour été fournie.

Dans le paragraphe 3.2, nous passerons en revue les différentes tentatives d'explication théorique et expérimentale sur ces derniers points puis nous montrerons, au paragraphe 3.3, par des études systématiques de largeur de raie sur des boîtes uniques, que les processus de décohérence incompris jusqu'ici sont en grande partie déterminés par la présence d'un environnement électrostatique fluctuant autour de la boîte dont nous pouvons expérimentalement modifier le degré d'activation.

## 3.1 Les ailes de phonons acoustiques

### 3.1.1 Déviations par rapport à un spectre lorentzien

La transition fondamentale d'une boîte quantique, envisagée dans le schéma de l'atome artificiel à deux niveaux, donne lieu à un spectre lorentzien dont la largeur est déterminée par les taux d'amortissement des cohérences (voir chapitre d'introduction).

Des expériences de micro-photoluminescence sur une boîte unique II-VI de

CdTe/ZnTe ont mis en évidence une déviation par rapport à ce comportement lorentzien, déviation qui devient de plus en plus importante lorsque la température augmente [60] (voir partie gauche de la figure 3.1.1). A l'époque de la publication de ces résultats, les études de micro-photoluminescence sur boîte InAs/GaAs unique étaient déjà très avancées et aucune ne faisait mention d'un tel comportement non-lorentzien. Une première indication de l'existence de cet effet pour les boîtes InAs/GaAs a été apportée par une expérience d'optique non-linéaire (mélange à quatre ondes) sur un ensemble inhomogène de boîtes [24]. Dans cette expérience, un déclin non-exponentiel du signal de mélange à quatre ondes est observé avec une composante courte. Dans l'hypothèse où toutes les boîtes ont le même temps  $T_1$  et le même temps  $T_2$  (ce qui n'est pas vrai pour un ensemble de boîtes) le profil spectral est la transformée de Fourier de ce signal et la composante courte donne des ailes "non-lorentziennes" dans le spectre (voir partie droite de la figure 3.1.1).

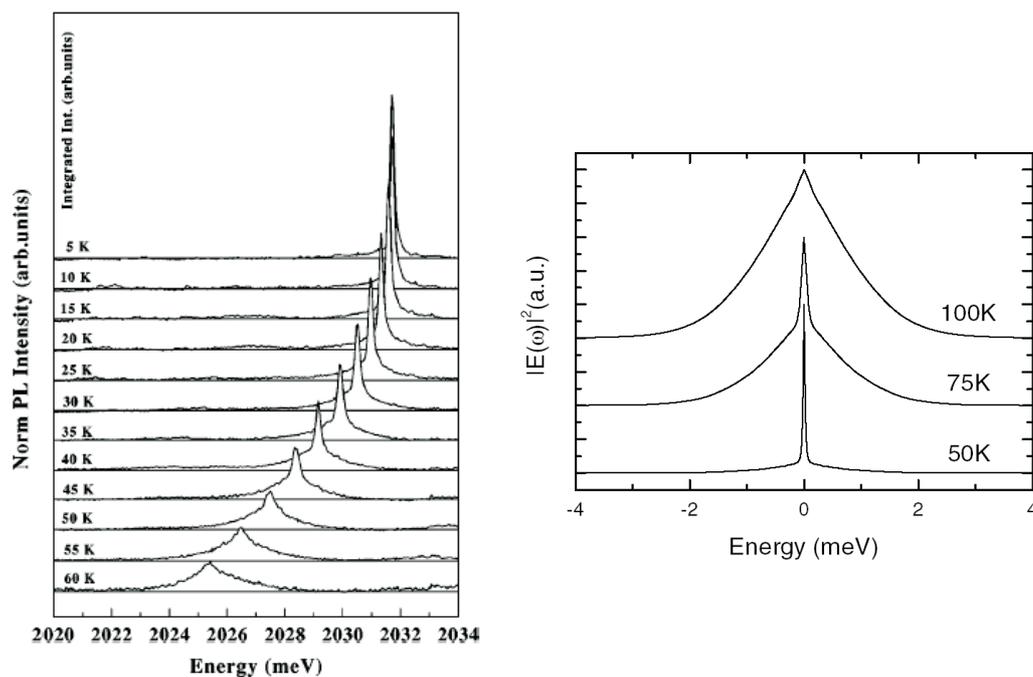


FIG. 3.1.1 – A gauche, spectres de micro-photoluminescence sur une boîte quantique II-VI en fonction de la température [60]. A droite, spectre d'émission d'une boîte InAs en fonction de la température, déduit de la décroissance temporelle du signal de mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes [24].

Nous avons voulu comprendre si ces comportements non-lorentziens étaient bien intrinsèques aux boîtes quantiques de semiconducteurs, qu'elles soient faites de matériaux II-VI ou III-V. Nous avons à cet effet étudié optiquement en fonction de la température plusieurs boîtes uniques InAs/GaAs et nous nous sommes ainsi

affranchis des effets de moyenne d'ensemble de l'expérience de mélange à quatre ondes précédemment citée.

### 3.1.2 Résultats expérimentaux

Nous avons mené des expériences de micro-photoluminescence sur des boîtes uniques d'InAs/GaAs de l'échantillon A sous excitation non-résonante, au-dessus de l'énergie de gap du GaAs, à l'aide d'un laser HeNe à 932 nm (1.96 eV) [61]. Nous présentons ici des résultats sur deux boîtes distinctes de l'échantillon A de largeur de raie fondamentale différente (boîtes quantiques  $\alpha$  et  $\beta$  de largeur respective 390 et 180  $\mu\text{eV}$  à 10 K dans ces conditions d'excitation). Nous montrons sur la figure 3.1.2 (A) l'évolution en température du spectre correspondant à la boîte quantique  $\alpha$  [61]. Des fits lorentziens ajustés sur la partie centrale sont indiqués en trait plein.

Alors que la raie est quasi-lorentzienne à très basse température, elle acquiert des ailes à basses et hautes énergies à partir de 30 K. Ces ailes finissent par dominer l'allure du spectre à 80 K. L'ampleur de ce phénomène est évaluée quantitativement en traçant le rapport du poids de la raie lorentzienne centrale au poids de la raie totale (voir encart de la figure 3.1.2 (A)). Ce rapport vaut 0.8 à 5 K et diminue progressivement lorsque la température augmente. Il vaut 0.38 à 70 K et n'est plus bien défini à 80K car le spectre global recouvre une allure quasi-lorentzienne et il n'est alors plus possible de séparer correctement les ailes de la partie centrale.

La déviation d'un profil lorentzien d'émission est clairement observée ; comment se fait-il alors que ce phénomène n'ait pas été observé antérieurement par les différents groupes travaillant sur des boîtes uniques InAs/GaAs, y compris le nôtre ? Le cas de la boîte quantique  $\beta$ , de largeur à mi-hauteur à 10 K plus faible d'un facteur 2 que la boîte  $\alpha$ , est instructif à cet égard. Nous reproduisons en figure 3.1.2 (B) l'étude en température effectuée sur cette boîte. Sur cette figure, nous observons que la raie de la transition fondamentale conserve un profil lorentzien jusqu'à 70 K avec un très bon accord (voir l'encart de la figure 3.1.2 (B)). Cette observation laisse donc à penser que la largeur de raie joue un rôle dans l'observation expérimentale des ailes non-lorentziennes. Essayons de comprendre pourquoi.

### 3.1.3 Le modèle de Huang-Rhys

Nous allons donner dans ce paragraphe une image stationnaire dans le temps du système mixte composé de la boîte quantique et de son environnement cristallin. Nous insisterons sur l'action des modes de vibration acoustiques du cristal. Nous utilisons à cet effet une extension au cas d'une paire électron-trou du modèle de Huang-Rhys d'interaction localisée électron-phonon [62].

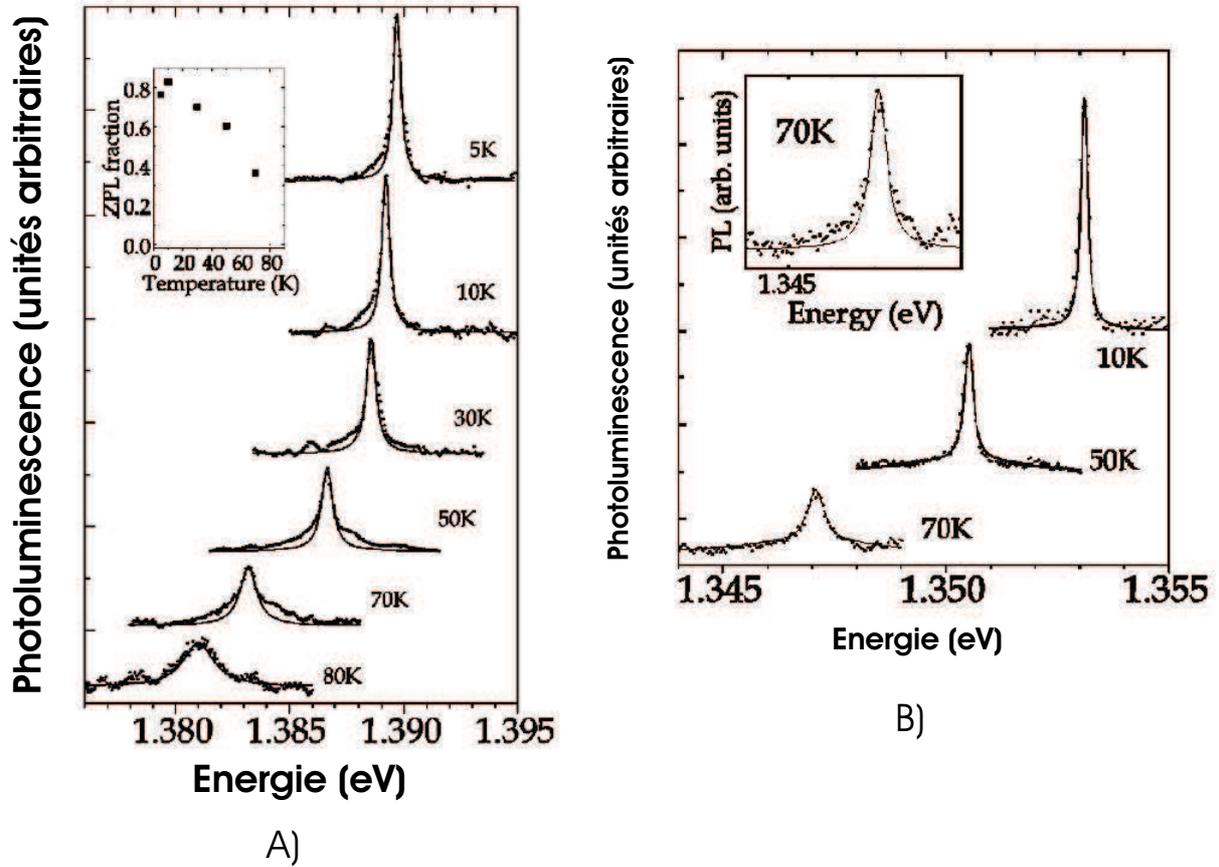


FIG. 3.1.2 – A) Spectres de photoluminescence en fonction de la température pour la boîte  $\alpha$ . Expérience (symboles) et fit lorentzien ajusté sur la partie centrale (trait plein). B) Spectres de photoluminescence en fonction de la température pour la boîte  $\beta$ . Expérience (symboles) et résultats de nos calculs (trait plein). Le trait plein en encart est en revanche un simple fit lorentzien.

Puisque l'énergie moyenne d'un phonon acoustique en interaction avec une boîte quantique (quelques meV) est bien inférieure à l'écart en énergie entre le premier et le second niveau de paire électron-trou dans la boîte (quelques dizaines de meV ici), nous allons cantonner notre analyse au premier niveau excitonique de la boîte noté  $|e\rangle$ , exciton fondamental, couplé à un continuum de phonons acoustiques que nous prendrons de dispersion linéaire. Si ce couplage est lui-même linéaire en  $\mathbf{c}$  et  $\mathbf{c}^+$ , opérateurs destruction et création de phonons acoustiques, l'hamiltonien du système (exciton + phonons) s'écrit :

$$H = E_0 + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} \mathbf{c}_{\vec{q}}^{\dagger} \mathbf{c}_{\vec{q}} + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} (f_{\vec{q}}^* \mathbf{c}_{\vec{q}}^{\dagger} + f_{\vec{q}} \mathbf{c}_{\vec{q}}) \quad (3.1.1)$$

avec  $[\mathbf{c}_{\vec{q}}, \mathbf{c}_{\vec{l}}^{\dagger}] = \delta_{\vec{q}, \vec{l}}$  (relation de commutation de bosons), où  $E_0$  est l'énergie

du premier niveau excitonique  $|e\rangle$  et  $\hbar\omega_{\vec{q}}$  l'énergie du mode de phonon  $\vec{q}$ . Nous notons  $f_{\vec{q}} = \langle e, 0 | H_{exciton-phonon} | e, 1_{\vec{q}} \rangle / \hbar\omega_{\vec{q}}$  l'élément de matrice caractérisant l'intensité du couplage exciton-phonon acoustique. Dans la suite nous ne considérerons que le couplage dû au potentiel de déformation, qui est prépondérant pour les phonons acoustiques dans les nanostructures de GaAs [63].

En posant  $\mathbf{a}_{\vec{q}} = \mathbf{c}_{\vec{q}} + f_{\vec{q}}^+$ , on peut réécrire cet hamiltonien sous la forme

$$H = E_0 - \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} \mathbf{a}_{\vec{q}}^+ \mathbf{a}_{\vec{q}} \quad (3.1.2)$$

avec  $[\mathbf{a}_{\vec{q}}, \mathbf{a}_{\vec{l}}^+] = \delta_{\vec{q}, \vec{l}}$  (relation de commutation de bosons également).

C'est l'hamiltonien d'un ensemble d'oscillateurs harmoniques indépendants (modèle des bosons indépendants [62]). Le niveau fondamental est un état du système où aucun de ces oscillateurs n'est excité, c'est à dire un état  $|\tilde{e}\rangle$  tel que  $\mathbf{a}_{\vec{q}} |\tilde{e}\rangle = 0$ . En écrivant  $|\tilde{e}\rangle$  sur la base des états  $\mathbf{c}_{\vec{q}}^+ |e, 0\rangle$  et en exprimant la condition  $\mathbf{a}_{\vec{q}} |\tilde{e}\rangle = 0$ , nous obtenons :

$$|\tilde{e}\rangle = \exp\left(-\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* / 2\right) \exp\left(\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* \mathbf{c}_{\vec{q}}^+\right) |e, 0\rangle \quad (3.1.3)$$

C'est donc un état excitonique habillé par des phonons acoustiques qui est l'état fondamental de notre système (exciton + phonons). Notons qu'il n'y a pas d'intrication entre exciton et phonons dans cet état ( $|\tilde{e}\rangle$  peut s'écrire  $|e\rangle \otimes |phonons\rangle$ ) et qu'il ne s'agit donc pas à proprement parler d'une situation de couplage fort. Cet état fondamental est une combinaison linéaire d'états du type  $\mathbf{c}_{\vec{q}}^{+n} |e, 0\rangle$  avec n quelconque : c'est la superposition du niveau excitonique  $|e\rangle$  de départ (n=0) avec des niveaux de poids plus faible où un (n=1) ou plusieurs phonons (n> 1) sont présents (voir figure 3.1.3).

La structure habillée de ce niveau va se traduire par un profil composite de la raie de photoluminescence. Ce profil est constitué d'une raie centrale de largeur nulle correspondant à la recombinaison radiative de l'exciton  $|e\rangle$  sans intervention des modes de phonons (la raie à zéro phonon ou ZPL pour Zero Phonon Line en anglais) et de deux ailes à hautes et basses énergies, traces de recombinaisons radiatives de l'exciton accompagnées respectivement de l'absorption ou de l'émission d'un ou plusieurs phonons acoustiques : c'est la superposition de la transition radiative d'un atome artificiel à deux niveaux et de ses répliques dues à l'intervention des vibrations acoustiques du cristal.

Plus précisément, lorsque l'énergie thermique est plus petite que l'énergie moyenne des phonons acoustiques couplés à la boîte quantique ( $kT \ll 1$  meV), il y a peu de phonons ( $N \ll 1$ ) et le processus d'émission de phonons (en N+1) est prépondérant par rapport au processus d'absorption (en N). La recombinaison radiative de l'exciton assistée par l'émission de phonons est plus probable que la

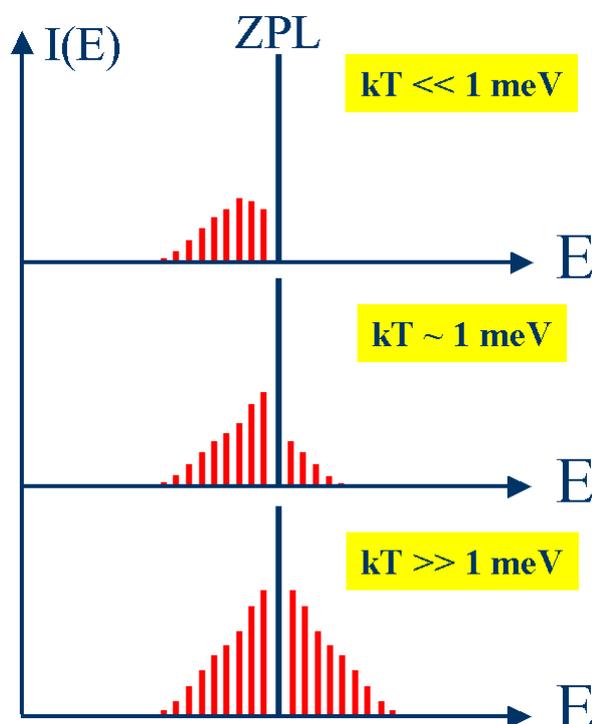


FIG. 3.1.3 – *Distribution spectrale des photons émis lors de la recombinaison radiative de l'exciton dans une boîte quantique dans le cadre du modèle de Huang-Rhys.*

recombinaison radiative assistée par leur absorption. Il en résulte un profil optique spectral de forme asymétrique, composé de la raie centrale accompagnée d'une aile basse énergie, ce qui est schématisé sur la figure 3.1.3 et que nous observons expérimentalement jusqu'à 30 K dans le cas de la boîte de la figure 3.1.2.

Lorsque la température augmente et est comparable ou supérieure à l'énergie moyenne des phonons acoustiques couplés à la boîte,  $N$  devient supérieur à 1 et les processus d'émission et d'absorption tendent à s'égaliser. Dans ce cas, le profil spectral devient symétrique, ce qui est représenté sur la figure 3.1.3. Les ailes à basses et hautes énergies du profil optique acquièrent alors des poids égaux, ce que nous observons expérimentalement à partir de 50 K sur la figure 3.1.2.

En estimant que la transition entre les deux régimes s'opère vers 40 K, nous obtenons une énergie moyenne des phonons acoustiques dans le système de 4 meV, ce qui, en prenant la dispersion des phonons acoustiques dans GaAs, correspond à une longueur d'onde de 5 nm environ. Cette énergie moyenne correspond à l'énergie des modes de phonons acoustiques qui se couplent efficacement aux porteurs dans la boîte. Si nous ne nous intéressons qu'aux premiers états  $s$  pour l'électron et le trou dans la boîte, dont les enveloppes sont essentiellement données par la géométrie de la boîte (voir figure 1.3.4 du chapitre I), les phonons

acoustiques qui se couplent bien aux porteurs dans la boîte sont ceux dont la longueur d'onde est comparable à l'extension de la fonction d'onde  $s$  en question, c'est à dire environ égale à la taille de la boîte [52]. Le fait que les phonons de longueur d'onde 5 nm jouent un rôle particulier dans nos résultats nous invite à penser que nous sommes en présence d'une boîte quantique petite, de dimension moyenne 5 nm, ce qui est consistant avec l'énergie d'émission de la boîte, 1.39 eV, qui est très proche de l'énergie d'émission de la couche de mouillage (1.42 eV sur cet échantillon A). En effet, sans tenir compte des effets de contrainte et de composition, l'énergie d'émission au niveau de la transition fondamentale d'une boîte est d'autant plus proche de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage que la boîte est petite [64].

Dans le cadre du modèle de Huang-Rhys que nous avons présenté, la largeur de la raie à zéro phonon est nulle. Si nous voulons comparer quantitativement les prévisions de ce modèle à nos spectres de photoluminescence où la raie centrale a une largeur non nulle, il nous faut convoluer la réponse optique prévue par le modèle avec une lorentzienne dont la largeur est un paramètre libre. Sur la figure 3.1.2 (A), nous observons que la lorentzienne utilisée pour ajuster la partie centrale de la raie a une largeur non nulle à 5 K et qui s'accroît avec la température. Cet élargissement en température est reporté en encart de la figure 3.1.4. A l'aide d'un programme écrit par Olivier Verzelen pendant sa thèse [52], nous effectuons, dans le cadre du modèle de Huang-Rhys, des calculs où nous prenons pour largeur de la raie à zéro phonon la largeur de la lorentzienne utilisée pour ajuster la partie centrale de la raie (figure 3.1.2 (A)). Avec cette procédure, nous obtenons un très bon accord avec l'expérience (voir figure 3.1.4).

Nous pouvons à présent comprendre le lien entre la largeur de la raie à zéro phonon à température nulle et l'observation expérimentale plus ou moins aisée des ailes de phonons acoustiques. Lorsque nous convoluons la réponse optique correspondant au modèle de Huang-Rhys (donnée en figure 3.1.3) avec une raie à zéro phonon lorentzienne, normée et de largeur  $\Gamma_{ZPL}$  non nulle, l'intensité intégrée spectralement des ailes de phonons ne dépend pas de la largeur de la lorentzienne normée choisie. Puisque les modes de phonons forment un quasi-continuum, la hauteur, dans le signal d'émission, du fond large spectralement que constituent les ailes ne dépend pas non plus de la largeur  $\Gamma_{ZPL}$  de cette lorentzienne normée (tant que  $\Gamma_{ZPL}$  reste petit devant l'extension spectrale des ailes). Si nous superposons maintenant à ce fond la raie lorentzienne normée à zéro phonon, celle-ci s'en démarque d'autant mieux que sa largeur est petite, puisque sa valeur maximale est inversement proportionnelle à sa largeur.

En revanche, dans le cas où la lorentzienne normée est large et sa valeur maximale petite, le poids apparent pris par le fond des ailes de phonons devient important : il est aisé dans ce cas d'observer les ailes de phonons. Nous montrons en figure 3.1.5 cette tendance pour deux largeurs de raie différentes. Sur cette figure, nous avons tracé en pointillés horizontalement le niveau de bruit à partir

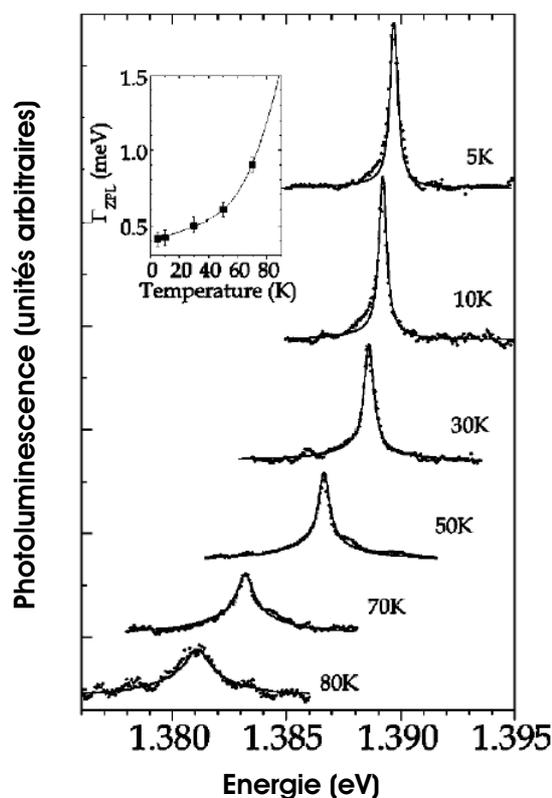


FIG. 3.1.4 – Accord théorie-expérience pour les ailes de phonons de la boîte quantique  $\alpha$ . En encart, l'évolution en température de la largeur spectrale de la raie centrale lorentzienne.

duquel les ailes de phonons sont masquées, c'est à dire le niveau de bruit à partir duquel nous ne pouvons plus distinguer une lorentzienne centrale seule d'une lorentzienne accompagnée par ses ailes de phonons. Pour la raie à zéro phonon fine, à gauche sur la figure 3.1.5, il faut un rapport signal sur bruit de 10 pour distinguer les ailes de phonons alors que pour la raie plus large de droite, il suffit d'un rapport signal sur bruit de 3.

Il est donc plus difficile d'observer le phénomène d'apparition des ailes de phonons acoustiques dans le cas d'une boîte quantique dont la raie à zéro phonon est très fine. Ceci explique l'absence au moment de nos expériences d'étude détaillée de cet effet dans les matériaux III-V, puisque l'attention des différents groupes était alors focalisée sur l'obtention de raies fines proches de la limite radiative. Dans les boîtes quantiques de matériaux II-VI par contre, où le couplage Huang-Rhys est comparable au cas des III-V mais où les largeurs de raie sont plus grandes, l'observation des ailes de phonons est plus aisée. Ceci explique probablement pourquoi c'est sur ces matériaux que les ailes ont été vues la première fois [60].

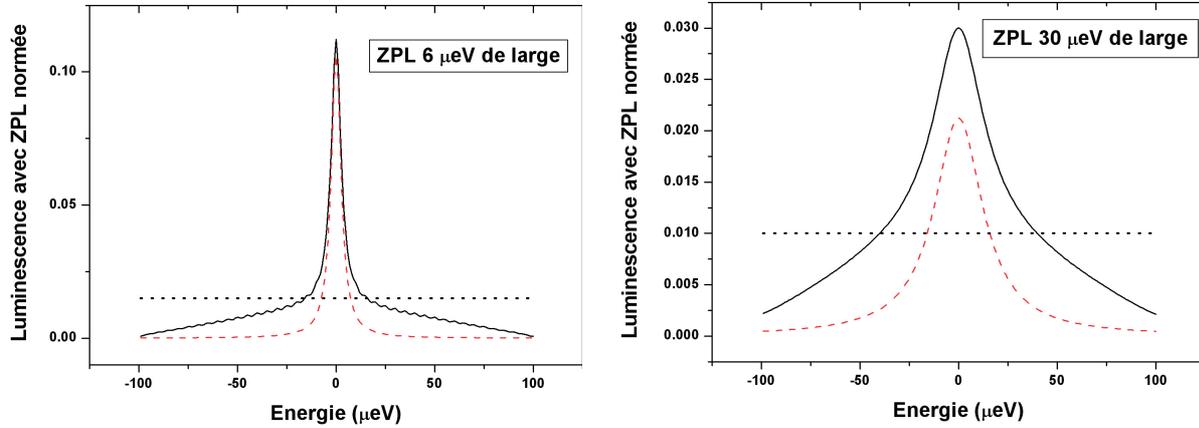


FIG. 3.1.5 – *Visibilité des ailes en fonction de la largeur de la raie à zéro phonon. A couplage avec les phonons constant, les ailes sont plus visibles si la raie à zéro phonon est plus large, comme ici à droite. En trait continu : la raie à zéro phonon habillée de ses ailes de phonons. En pointillés : la raie à zéro phonon seule. En pointillés horizontalement : niveau de bruit à partir duquel on ne distingue plus les ailes.*

Nous avons donc à ce stade une compréhension quantitative de l'apparition d'ailes de phonons dans les spectres de luminescence : elles sont dues à un couplage non perturbatif de l'exciton dans la boîte avec les phonons acoustiques du système. A haute température (80 K pour la boîte  $\alpha$ ), nous avons vu que la raie d'émission sur boîte unique recouvrait un profil quasi-lorentzien dominé par la contribution des ailes. Dans ce régime, la largeur à mi-hauteur de la raie n'est pas déterminée par la largeur de la raie à zéro phonon mais par l'extension spectrale des ailes qui résultent de la nature mixte de l'excitation (exciton + phonons). Ce résultat est d'une grande importance pour les applications visant à utiliser les boîtes quantiques à haute température, comme les sources de photons uniques indiscernables, qui nécessitent de travailler dans le régime  $T_2 = 2T_1$  où l'élargissement de la raie d'émission est uniquement régi par des processus radiatifs, ou encore les lasers à boîtes quantiques, pour lesquels l'élargissement homogène fixe une limite à la largeur de la courbe spectrale de gain. Avec les ailes de phonons acoustiques, la largeur homogène sur une boîte quantique à température ambiante est de l'ordre de 5 à 10 meV, comme observé dans [26].

Notre description est par ailleurs indépendante des matériaux, puisque le couplage aux phonons acoustiques par le potentiel de déformation dépend peu des matériaux (contrairement au couplage avec les phonons optiques via l'interaction de Fröhlich) : elle fonctionne pour les boîtes II-VI comme pour les boîtes III-V InAs/GaAs ou les boîtes constituées de défauts d'interface dans les puits GaAs

[65] et s'applique tout aussi bien pour les boîtes en matériaux III-V à base de nitrures (notamment GaN/AlN), dont les premiers spectres sur objet unique commencent à apparaître [66] et dont on attend beaucoup pour le fonctionnement à haute température en tant que sources de photons.

## 3.2 Elargissement de la raie à zéro phonon par les phonons acoustiques

Comme nous l'avons déjà souligné, le modèle de Huang-Rhys ne permet de comprendre ni la largeur de la raie à zéro phonon à température nulle ni l'élargissement homogène de la raie à zéro phonon en fonction de la température, observé sur la figure 3.1.2 (A) et reporté en encart de la figure 3.1.4. Cet élargissement, observé par plusieurs groupes sur boîte unique [26, 25, 49, 67, 61], est bien décrit expérimentalement par la loi suivante :

$$\Gamma = \Gamma_0 + aT + b \exp(-\hbar\omega_0/kT) \quad (3.2.1)$$

Le terme thermoactivé  $b \exp(-\hbar\omega_0/kT)$ , qui correspond à l'action des phonons optiques sur la cohérence de la transition fondamentale, a été observé systématiquement sur boîte unique par Cécile Kammerer durant sa thèse [50] avec une énergie d'activation qui varie de 21 à  $28 \pm 5$  meV. Nous l'avons également toujours observé durant nos travaux. Malheureusement, l'impossibilité de mesurer une largeur de raie sur boîte unique jusqu'à température ambiante (le niveau de signal de photoluminescence devenant trop faible) ne permet pas d'extraire avec précision une valeur pour le coefficient  $b$ . Des résultats récents d'une expérience de mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes donnent cependant  $b=4.5$  meV [68] (avec une énergie d'activation de 28 meV). L'action des phonons optiques sur la cohérence de la transition fondamentale a été étudié théoriquement par Olivier Verzelen durant sa thèse [52, 69] dans le cadre de transitions entre états polaroniques en régime de couplage fort exciton-phonon LO. Cette étude permet de rendre compte d'énergies d'activation situées entre 21 et 28 meV mais ses prévisions sur le coefficient  $b$  donnent des valeurs beaucoup plus faible que 1 meV.

Les valeurs du coefficient  $a$  sont elles très dispersées d'un groupe à l'autre (de 0.05 à  $3.5 \mu\text{eV/K}$ ), comme nous le détaillons plus loin. A ce jour, aucun modèle ne permet de rendre compte de l'élargissement linéaire  $aT$  à basse température et de la diversité des résultats obtenus par les groupes travaillant sur les boîtes quantiques.

Nous allons dans cette section passer en revue les différents résultats et interprétations avancées sur ce sujet ces dernières années.

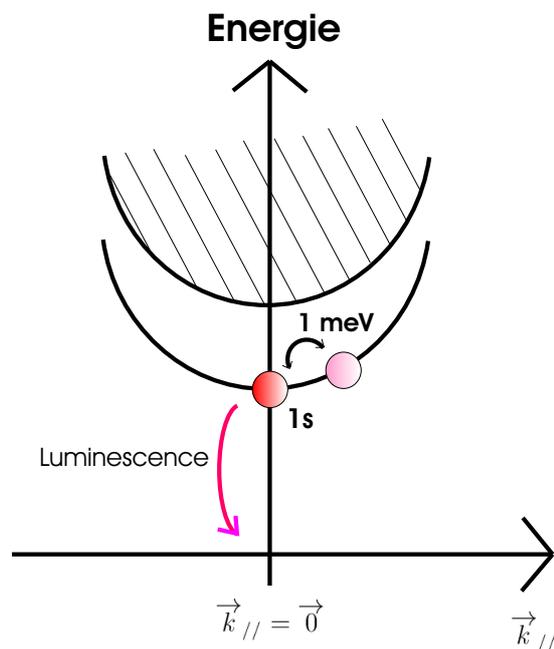


FIG. 3.2.1 – Situation dans un puits quantique : la transition fondamentale se trouve au voisinage d'un continuum d'états auquel elle peut se coupler grâce aux phonons acoustiques.

### 3.2.1 Mécanismes d'élargissement dans un puits quantique

Commençons par rappeler les mécanismes d'élargissement en température de la transition fondamentale d'un puits quantique. Dans un puits quantique, à cause de l'invariance par translation dans le plan des couches, il existe un continuum d'états au voisinage de la transition fondamentale et les phonons peuvent aisément assurer un couplage avec ce continuum (voir figure 3.2.1). Nous sommes dans le cas d'un état excitonique (celui correspondant à la transition fondamentale) couplé à un continuum et nous pouvons appliquer la règle d'or de Fermi pour calculer le taux de diffusion de la population de cet état.

$$\Gamma = 2\pi \sum_f \langle f | H_{Exciton-Phonon} | i \rangle^2 \delta(E_f - E_i) \quad (3.2.2)$$

où  $|i\rangle$  est l'état de départ, correspondant à l'exciton 1s en  $\vec{k} = \vec{0}$ , et  $|f\rangle$  est un état final appartenant au continuum proche et correspondant à un exciton en  $\vec{k} \neq \vec{0}$ . Dans le cas d'un couplage linéaire électron-phonon, seuls les processus d'absorption et d'émission à un phonon interviennent et leur amplitude de probabilité au carré est proportionnelle respectivement à  $N$ , nombre d'occupation du mode de phonon concerné, et à  $N+1$ .

Ce nombre d'occupation est un facteur de Bose-Einstein :

$$N(T) = \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega_q}{kT}) - 1} \quad (3.2.3)$$

pour un mode de phonon d'énergie  $\hbar\omega_q$ .

L'énergie moyenne des phonons acoustiques absorbés dans le système est de 1 meV, ce qui correspond à une température de 10 K. Sur la plage expérimentale de température 10 – 100 K, nous pouvons donc linéariser le nombre d'occupation en  $N(T) = \frac{kT}{\hbar\omega_q}$ . Le taux  $\Gamma_{LA}$  de diffusion de la population, du aux phonons acoustiques, dépend alors linéairement de la température :

$$\Gamma_{LA} = aT \quad (3.2.4)$$

Les phonons optiques sont peu dispersés et leur énergie moyenne est de  $\hbar\omega_{LO} = 36$  meV dans GaAs, ce qui correspond à une température de 417 K. De 10 K à 100 K, le facteur de Bose est donc approximativement  $N(T) = \exp(-\frac{\hbar\omega_{LO}}{kT})$  et les phonons optiques donnent une contribution thermoactivée au taux de diffusion de la population :

$$\Gamma_{LO} = b \exp(-\frac{\hbar\omega_{LO}}{kT}) \quad (3.2.5)$$

La littérature sur les puits quantiques est riche d'études de tels mécanismes, qui se traduisent par un élargissement homogène de la transition fondamentale excitonique. Pour des puits  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  et  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ , le coefficient  $a$  varie de 2 à 10  $\mu eV/K$  et  $b$  de 10 à 20 meV [70, 71, 72].

### 3.2.2 Différents résultats dans différents groupes

Dans une boîte quantique, il doit en aller autrement puisque la densité d'états électroniques  $y$  est discrétisée et que la transition fondamentale est isolée énergétiquement de tout continuum à l'échelle énergétique des phonons acoustiques impliqués, i.e. quelques meV (voir chapitre I figure 1.4.5). En conséquence, les phonons acoustiques doivent avoir une action quasi-nulle sur l'élargissement de cette transition [51]. Or les résultats expérimentaux ne confirment que partiellement cette tendance. L'élargissement de la transition fondamentale à basse température s'accorde toujours bien à la loi de l'équation 3.2.1 avec des valeurs du coefficient  $a$  beaucoup plus dispersées que pour les puits : de 0.05  $\mu eV/K$  [49] à 3.5  $\mu eV/K$  [61].

Nous reproduisons dans le tableau suivant les résultats publiés par différents groupes pour le coefficient  $a$ , précisant à chaque fois les conditions expérimentales :

Référence	Détails expérimentaux	a en $\mu\text{eV}/K$
[61]	Boîte unique dans une méssa	3.5
[67]	Boîte unique à travers un masque	2
[50]	Boîte unique dans une méssa	0.12 à 2.1
[26]	Boîte unique dans une méssa	0.5
[25]	Boîte unique à travers un masque	0.5
[25]	Ensemble de boîtes en mélange à quatre ondes	0.5
[24]	Ensemble de boîtes en mélange à quatre ondes	0.22
[50]	Boîte unique dans une méssa	0.05 à 0.1

Les expériences sur boîte unique nécessitent d'avoir des échantillons microstructurés (mésas ou masques avec ouvertures submicroniques) sur lesquels plusieurs étapes de technologie post-épitaxie ont été réalisées, contrairement aux échantillons utilisés pour des expériences sur des ensembles de boîtes, comme le mélange à quatre ondes. Il ne semble cependant pas y avoir de corrélation entre la valeur du coefficient  $a$  et les conditions expérimentales employées. En particulier, les plus petites valeurs de  $a$  ont été obtenues avec des boîtes contenues dans des mésas.

Durant sa thèse, Cécile Kammerer a étudié sur un même échantillon des corrélations entre la valeur de  $a$  et la distance énergétique de la transition fondamentale au continuum des états mixtes boîte-couche de mouillage [50]. La proximité plus ou moins forte de ce continuum d'états semble favoriser des valeurs de  $a$  plus élevées. Cette tendance se confirme dans les résultats que nous présentons ici sur la boîte quantique  $\alpha$  : la transition fondamentale y est très proche de la couche de mouillage et la valeur de  $a$  ( $3.5 \mu\text{eV}/K$ ) est très élevée, de l'ordre de celles observées dans les puits.

Cependant, si nous cherchons à construire une théorie simple, basée sur l'image que nous avons donnée précédemment pour les puits quantiques, de l'élargissement de la transition fondamentale par des transitions assistées par les phonons acoustiques vers d'autres états de la boîte, la présence d'un continuum d'états séparé de la transition fondamentale par l'énergie  $\Delta E$  devrait donner lieu pour son élargissement à un comportement activé en température avec une énergie d'activation de  $\Delta E$ . Or ce n'est pas le cas, nous avons bien un comportement linéaire à basse température. Qui plus est, si le couplage aux phonons acoustiques a déjà été inclus dans notre modélisation des ailes de phonons comme nous l'avons démontré précédemment, ce qui est le résultat d'un couplage non-perturbatif, alors nous ne pouvons parallèlement les traiter en perturbation pour la transition fondamentale à l'aide de la règle d'or de Fermi comme nous l'avons fait pour les puits quantiques. Notre compréhension du rôle des phonons acoustiques n'est donc que partielle.

### 3.2.3 Transitions virtuelles et déphasage pur

Dans le paragraphe 3.2.1 sur les mécanismes d'élargissement dans un puits quantique, nous avons décrit le taux de relaxation de la population de l'état excitonique et en avons donné une expression à l'aide de la règle d'or de Fermi. Ce taux de relaxation donne une contribution à la perte de cohérence de la transition fondamentale mais il existe une autre contribution dite de déphasage pur qui n'implique aucune modification des populations concernées.

Dans les boîtes quantiques et les nanocristaux, Takagahara a introduit en 1999 l'idée d'un déphasage pur de l'exciton fondamental via deux types de processus microscopiques [73] : d'une part des processus de transition assistés par les phonons acoustiques vers les autres niveaux excitoniques de la boîte quantique suivie d'un retour à l'état excitonique fondamental (processus de type 1), et d'autre part des processus où l'état excitonique pertinent reste tout au long du processus l'état fondamental (processus de type 2) (voir figure 3.2.2). Ces deux types de processus partent de l'état excitonique fondamental et après être passé par une phase intermédiaire reviennent au même état : ils ne font que donner lieu à une fluctuation temporelle de la phase de la fonction d'onde de l'exciton dans cet état, c'est à dire à un déphasage pur de l'exciton qui se traduit dans notre cas par un élargissement de la raie à zéro phonon.

Les processus de type 1, où il y a lors de la phase intermédiaire transition vers d'autres états excitoniques, correspondent à la partie extra-diagonale de l'interaction exciton-phonon écrite dans une base d'états excitoniques. Nous ne l'avons pas prise en compte dans l'étude des ailes de phonons puisque nous n'y avons considéré qu'un seul niveau excitonique. Les processus de type 2 correspondent à la partie diagonale de l'interaction, celle où l'état excitonique reste le même pendant la phase intermédiaire. Ce second type de processus recouvre tout ce qui peut altérer aléatoirement dans le temps la phase de la fonction d'onde de l'exciton sans le faire changer d'état pendant le processus : il s'agit, par exemple, de la présence soudaine d'une charge dynamique au voisinage de la boîte ou d'une fluctuation temporelle du champ magnétique local... Ce second type de processus n'a pas été pris en compte non plus dans notre étude des ailes de phonons acoustiques.

L'inclusion de ces deux types de processus devrait nous permettre de compléter le modèle de Huang-Rhys pour décrire à la fois l'apparition des ailes de phonons acoustiques et l'élargissement de la raie à zéro phonon.

L'énergie moyenne d'un phonon acoustique qui se couple efficacement à un exciton confiné dans une boîte quantique est de quelques meV [52], ce qui correspond à une température de moins de 50K. L'écart moyen entre les niveaux discrets des porteurs dans une boîte quantique InAs/GaAs étant de 30 meV, les transitions entre états discrets assistées par les phonons acoustiques, correspondant aux processus de type 1 introduits par Takagahara, ne peuvent

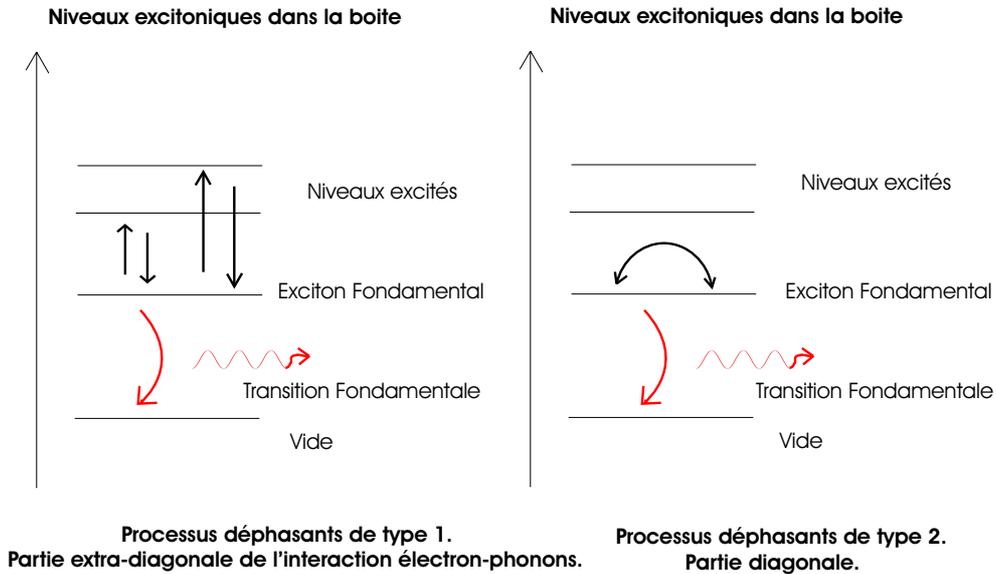


FIG. 3.2.2 – *Processus de déphasage pur de l'exciton fondamental introduits par Takagahara pour une boîte quantique. Les deux types de processus ne modifient pas la population de l'état excitonique fondamental.*

avoir qu'un caractère virtuel à basse température : le processus part de l'état fondamental, passe par un état excité et revient à l'état fondamental. Il affecte la phase de la fonction d'onde  $\psi(\vec{r})$  de l'exciton mais ne modifie pas son amplitude.

Takagahara a montré que la contribution des processus virtuels de type 1 par rapport aux processus de type 2 dépend beaucoup du régime de confinement quantique [73]. Dans un régime de confinement faible, où la séparation entre niveaux de porteurs est faible, les deux mécanismes ont des poids égaux, c'est le cas des nanocristaux de CuCl. Mais dans un régime de confinement fort, comme dans les boîtes InAs/GaAs, les transitions virtuelles doivent avoir une influence réduite et l'effet principal sur la transition fondamentale est le résultat des processus de type 2.

Muljarov a repris en 2004 le traitement d'une interaction exciton-phonons acoustiques non diagonale dans une boîte quantique InAs/GaAs [74]. En écrivant au premier ordre à partir de cette interaction une interaction effective diagonale, il fait apparaître un couplage exciton-phonon qui devient quadratique en opérateurs de phonons : dans ce cas, le modèle de Huang-Rhys, qui fait usage d'un couplage linéaire, n'est plus complet. Ce couplage quadratique induit un élargissement de la raie à zéro phonon car il rend instable l'état d'exciton habillé par ses phonons acoustiques que nous avons décrit précédemment (cet état était l'état propre fondamental du modèle de Huang-Rhys, il n'est plus état propre dans le cadre d'un couplage quadratique). Cet élargissement est exactement l'effet des processus virtuels de type 1 de Takagahara. En effectuant un calcul à l'aide de

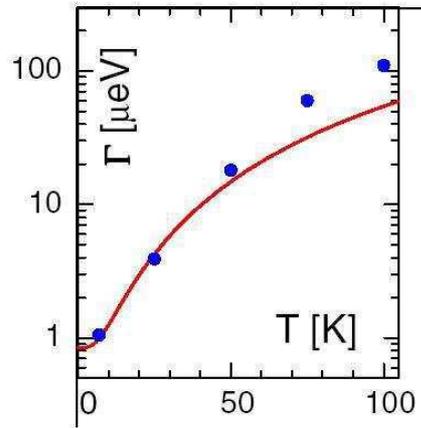


FIG. 3.2.3 – *Largeur de la raie à zéro phonon (points) : mesures par mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes [24]. Accord (trait plein) donné par la théorie des transitions virtuelles déphasantes de la référence [74].*

boîtes modélisées par des sphères à confinement parabolique, Muljarov parvient dans [74] à obtenir les ordres de grandeur corrects pour l'élargissement de la transition fondamentale étudié en mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes dans la référence [24] (voir figure 3.2.3). En revanche dans plusieurs autres confrontations à l'expérience, ce phénomène de transition virtuelle est trop faible pour expliquer quantitativement les élargissements observés [75, 76], ce qu'avait déjà compris Takagahara [73]. Notamment il ne rend pas compte de la dispersion des résultats reportés pour le coefficient  $a$  dans le tableau ci-dessus.

Par ailleurs les mécanismes de transitions virtuelles vers d'autres états de la boîte, s'ils contribuent à l'élargissement de la raie à zéro phonon, doivent le faire avec une efficacité qui varie avec l'écart de l'état excitonique fondamental aux états excitoniques à plus haute énergie ainsi qu'avec leur densité. Notamment s'il n'y a pas de niveaux excitoniques à plus haute énergie dans la boîte, l'efficacité de ces processus est très faible. Or nous avons observé des élargissements de la raie à zéro phonon dans des cas où nous n'avions aucune trace expérimentale de l'existence de tels états excités. De plus, si les phénomènes de transitions virtuelles régissent la largeur de la raie à zéro phonon à température nulle, nous devrions observer une raie plus fine dans les cas où la transition fondamentale est bien protégée en énergie du continuum des états mixtes boîte-couche de mouillage et de la couche de mouillage elle-même, c'est à dire dans le cas où la transition fondamentale est basse en énergie. Or nous n'avons jamais observé de corrélation entre l'énergie d'émission de la transition fondamentale d'une boîte et sa largeur de raie. Plus grave même, les raies les plus fines que nous ayons observées sont des raies qui se trouvent très proches en énergie de la couche de mouillage, sur l'échantillon A. Une absence de corrélation entre énergie d'émission et largeur de

raie a également été rapportée sur d'autres échantillons par Wolfgang Langbein [77].

Finalement, l'influence des processus déphasants via des transitions virtuelles vers des états à plus haute énergie est un phénomène certainement présent mais qui reste du second ordre et ne suffit ni à expliquer les tendances principales observées ni les résultats quantitatifs.

### 3.2.4 Temps de vie des phonons acoustiques

Nous avons jusqu'ici raisonné avec des modes de phonons acoustiques du matériau massif GaAs, considérant que la présence d'îlots nanométriques d'InAs au sein du matériau massif ne modifiait pas beaucoup ses propriétés acoustiques. Les paramètres mécaniques d'InAs et GaAs étant très proches, on considère toujours que les modes de vibrations acoustiques de GaAs pénètrent quasi-parfaitement dans les îlots d'InAs sans phénomènes de confinement ni d'élargissement de ces modes. C'est pourquoi dans nos simulations de l'apparition des ailes de phonons, nous avons utilisé les modes de phonons acoustiques du GaAs.

Comme nous l'avons vu lors de l'étude des ailes de phonons acoustiques, les excitations interbandes fondamentales dans une boîte quantique sont des entités mixtes (exciton + phonons acoustiques). Le déphasage de ces excitations peut donc être induit par un déphasage de la partie exciton comme par un déphasage de la partie phonon. Notamment si les phonons acoustiques ont une durée de vie plus courte que les temps caractéristiques de déphasage de l'exciton, ils participent à l'amortissement global de l'excitation et ainsi au phénomène d'élargissement de la raie d'émission correspondante en luminescence. La raie à zéro phonon est dans ce cas elle-aussi concernée par le biais des processus radiatifs assistés par l'émission puis la réabsorption d'un ou de plusieurs phonons.

Des mesures du temps de vie des phonons acoustiques dans un cristal de GaAs indiquent des temps de l'ordre de plusieurs ns, soit 6 à 7 ordres de grandeur plus grands que les temps de déphasage de l'exciton (quelques 100 ps). Cependant nous ne travaillons pas avec un cristal parfait de GaAs mais avec une matrice de GaAs de taille finie (une méso qui fait de 100 nm à 10  $\mu\text{m}$ ) qui possède de plus des défauts structuraux : les boîtes quantiques en InAs elles-mêmes et la couche de mouillage. D'un point de vue mécanique, la matrice de GaAs est un système mécanique de taille finie possédant des interfaces avec l'air sur les parois de la méso et avec le matériau InAs au niveau des boîtes quantiques et de la couche de mouillage en son sein. Il est alors légitime de chercher à savoir si les phonons acoustiques dans une telle matrice n'ont pas une durée de vie comparable aux temps de déphasage de l'exciton étudiés précédemment.

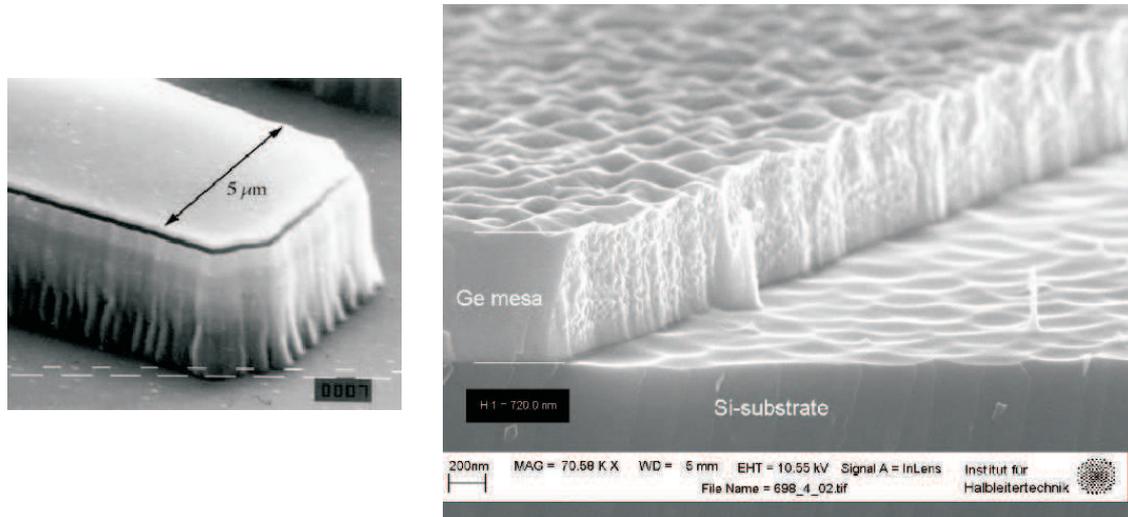


FIG. 3.2.4 – Exemples de rugosité sur des parois de mésas (GaAs à gauche, Ge à droite) observées en microscopie électronique.

### Parois des mésas

Les mésas sont des microstructures avec des imperfections de gravure et qui présentent une certaine rugosité de surface (voir figure 3.2.4). Les modes de phonons acoustiques confinés dans ces structures interagissent efficacement avec les boîtes quantiques et ressentent cette rugosité (leur longueur d'onde moyenne de quelques dizaines de nm est comparable à l'échelle spatiale de rugosité que nous voyons sur la figure 3.2.4). Les processus anharmoniques générés localement par cette rugosité accélèrent leur amortissement. Une étude systématique en microphotoluminescence des largeurs de raie de boîtes quantiques uniques situées dans des mésas de taille différente a été menée par Ortner en 2004 [76]. Ce travail fait état de corrélations entre le coefficient  $\alpha$  d'élargissement en température et la taille de la méssa observée : plus la méssa est petite, plus le coefficient  $\alpha$  est grand. Les auteurs concluent que c'est la rugosité des mésas qui est responsable de l'existence et du comportement du coefficient  $\alpha$ .

Cependant dans ce travail, il est difficile d'isoler les contributions des boîtes et des mésas en question dans la mesure où l'étude ne permet pas d'exclure des effets purement intrinsèques impliquant des différences de boîte à boîte et non pas de méssa à méssa. De plus, les conclusions tirées par les auteurs de cette étude ne permettent pas de comprendre les résultats des différents groupes reportés dans le tableau ci-dessus. C'est notamment sur les mésas les plus petites que Kammerer rapporte les coefficients  $\alpha$  les plus petits [27]. Enfin, on observe des élargissements à basse température même pour des boîtes ne se trouvant pas du tout dans des mésas [24, 25, 68]. Nous concluons donc que si les mésas jouent un rôle sur le temps de vie des phonons, c'est encore une fois au second ordre et que ce n'est

pas ce phénomène qui régit le comportement des élargissements en température ni la largeur des raies à température nulle.

### Interfaces avec les boîtes quantiques et la couche de mouillage

La couche de mouillage et les îlots d'InAs sont dans un échantillon des perturbations mécaniques au cristal parfait de GaAs dont l'influence n'a à ce jour été évaluée ni expérimentalement ni théoriquement. Les processus anharmoniques, qui sont connus pour conférer aux phonons optiques dans GaAs des temps de vie courts (une dizaine de ps), sont difficiles à évaluer pour les phonons acoustiques dans une boîte quantique plongée dans une matrice cristalline de matériau différent. Ils sont, dans un cristal, toujours plus importants à proximité d'impuretés mécaniques [78], mais aucune étude de l'ampleur de ce phénomène n'a été réalisée pour les boîtes quantiques d'InAs dans une matrice de GaAs. Des expériences de transport thermique, du type de celles menées par Fon sur des nanostructures suspendues [79], pourrait dans le cas d'échantillons de boîtes quantiques InAs/GaAs comparés à des échantillons de GaAs "pur", apporter des informations expérimentales sur ce point. En effet, elles donnent par un traitement adhoc une estimation des taux de diffusion des phonons dans la structure conductrice étudiée.

## 3.3 L'environnement fluctuant

Nous avons jusqu'ici détaillé le rôle joué directement par les phonons acoustiques sur la décohérence de la transition fondamentale. Nous avons mis en évidence l'existence d'ails de phonons acoustiques sur boîte unique InAs/GaAs et montré par le modèle de Huang-Rhys localisé que l'effet d'habillage de l'exciton par les phonons acoustiques est un phénomène très général qui dépend peu des matériaux. Les ailes de phonons que nous avons mises à jour sur boîte unique InAs/GaAs sont désormais observées dans de nombreux laboratoires [80, 81].

Par contre, les phonons acoustiques ne permettent d'expliquer directement ni le phénomène d'élargissement en température de la raie à zéro phonon de la transition fondamentale ni la largeur de cette raie à température nulle.

Nous allons à présent étudier l'influence de l'environnement de la boîte dans le but de comprendre ces deux phénomènes.

### 3.3.1 Introduction

Cécile Kammerer a étudié dans son travail de thèse les phénomènes d'élargissement de la transition fondamentale en luminescence d'une boîte unique InAs/GaAs en fonction de l'énergie d'excitation de la photoluminescence [50].

Elle a montré un élargissement systématique de cette transition en fonction de l'écart de l'énergie d'excitation à l'énergie de la transition sondée (voir figure 3.3.1). Ce résultat signifie que nous activons des canaux d'élargissement de la transition lorsque nous nous écartons d'une excitation strictement résonante de la transition.

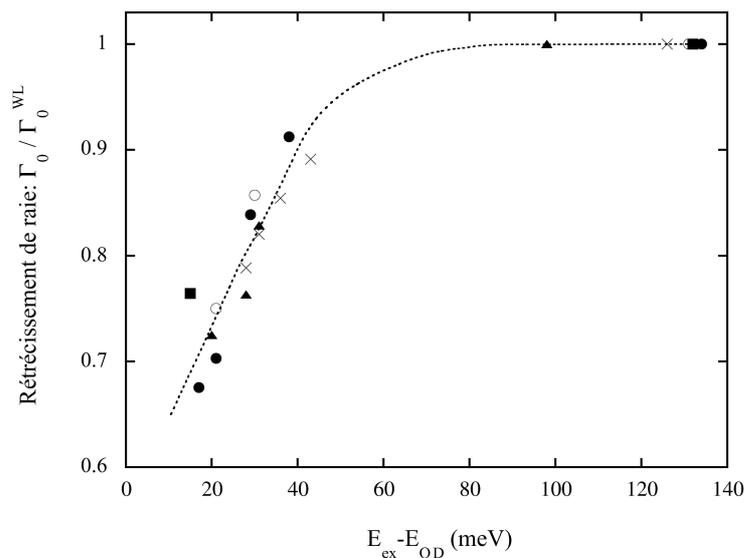


FIG. 3.3.1 – Rétrécissement de la raie d'émission de la transition fondamentale dans une expérience de photoluminescence sur boîte unique en fonction de la différence d'énergie entre le laser excitateur et la transition fondamentale sondée. La largeur de raie est normalisée à sa valeur lorsque l'excitation est réalisée dans la couche de mouillage [50].

Sur d'autres boîtes quantiques excitées de façon non-résonante, un phénomène d'élargissement inhomogène a déjà été observé, c'est le phénomène de diffusion spectrale. Sur les nanocristaux de CdSe [82] ou les boîtes quantiques auto-assemblées InP [83] et CdTe [84], les raies d'émission se déplacent en énergie au cours du temps, sur des échelles allant de la milliseconde à la seconde. L'interprétation généralement donnée de ce phénomène est la présence de charges piégées aux alentours de la boîte qui influencent par interaction électrostatique (effet Stark) l'énergie des porteurs dans le nano-objet et donc la position en énergie des raies d'émission au cours du temps. La diffusion spectrale peut aussi s'accompagner de clignotements des émetteurs, ce qui est le lot commun des expériences sur les nanocristaux.

Les résultats de Cécile Kammerer font penser à une phénomologie équivalente mais à une échelle de temps différente, où la diffusion spectrale est cette fois

remplacée par un élargissement homogène de la transition fondamentale. Lors d'une excitation non-résonante de la boîte quantique, des porteurs sont créés dans l'environnement de la boîte et participent aux fluctuations de charges électrostatiques, que ce soit en occupant des pièges électrostatiques autour de la boîte ou en occupant dynamiquement des états de la couche de mouillage et des états mixtes boîte-couche de mouillage. Plus l'excitation s'éloigne de la résonance et plus ce phénomène est favorisé. Ceci suggère l'existence d'un environnement électrostatique fluctuant autour de l'exciton correspondant à la transition fondamentale de la boîte, plus ou moins activé selon les conditions d'excitation. Cette image est fortement corroborée par les expériences d'absorption résonante sur boîte unique réalisées dans le groupe de Khaled Karrai à Munich. Les largeurs de raie mesurées dans ces expériences ( $1.2\mu\text{eV}$  [57, 85]) sont les plus proches de la limite radiative à avoir été obtenues sur boîte unique : dans ce cas, qui correspond à la limite  $E_{ex} - E_{QD} \rightarrow 0$  sur la figure 3.3.1, l'environnement de la boîte n'est presque pas activé. Nous avons poursuivi ces études pour identifier plus précisément les effets joués par les phonons et les charges fluctuantes.

### 3.3.2 Etude expérimentale de l'environnement fluctuant

Dans une même méso de  $1\mu\text{m}$  de côté gravée dans l'échantillon A, nous menons une étude systématique, par spectroscopie par transformée de Fourier, de la largeur de raie de la transition fondamentale sur 4 boîtes uniques distinctes (nommées A,B,C et D) en fonction de la puissance d'excitation et de la température. Dans cette étude, l'excitation est réalisée dans le GaAs à l'aide d'un laser continu HeNe à  $1.96\text{ eV}$  ( $632\text{ nm}$ ).

L'analyse dans ces 4 boîtes des processus d'élargissement de la raie à zéro phonon nous permet d'obtenir une image détaillée de l'environnement fluctuant autour d'une boîte quantique.

#### Élargissement en puissance à 10 K

L'intensité de photoluminescence sur les 4 boîtes A,B,C et D à 10 K augmente linéairement avec la puissance lumineuse d'excitation avant d'arriver à un seuil de saturation qui apparaît dans la gamme  $70\text{-}100\mu\text{W}$  sur les 4 boîtes. Nous montrons sur la figure 3.3.2 la largeur de raie à 10 K de la transition fondamentale de ces 4 boîtes en fonction de la puissance d'excitation.

La figure 3.3.2 nous montre qu'il y a un élargissement en puissance de la raie d'émission au niveau de la transition fondamentale pour les 4 boîtes A,B,C et D.

Sur la boîte A, la largeur de raie de  $24\mu\text{eV}$  est quasiment constante entre  $3.5$  et  $100\mu\text{W}$ . Entre  $100$  et  $200\mu\text{W}$ , la raie s'élargit de façon monotone et à plus forte puissance par contre (à partir de  $200\mu\text{W}$ ), nous observons une saturation de cet élargissement : la largeur de raie est alors de  $120\mu\text{eV}$ . Sur la boîte B, le

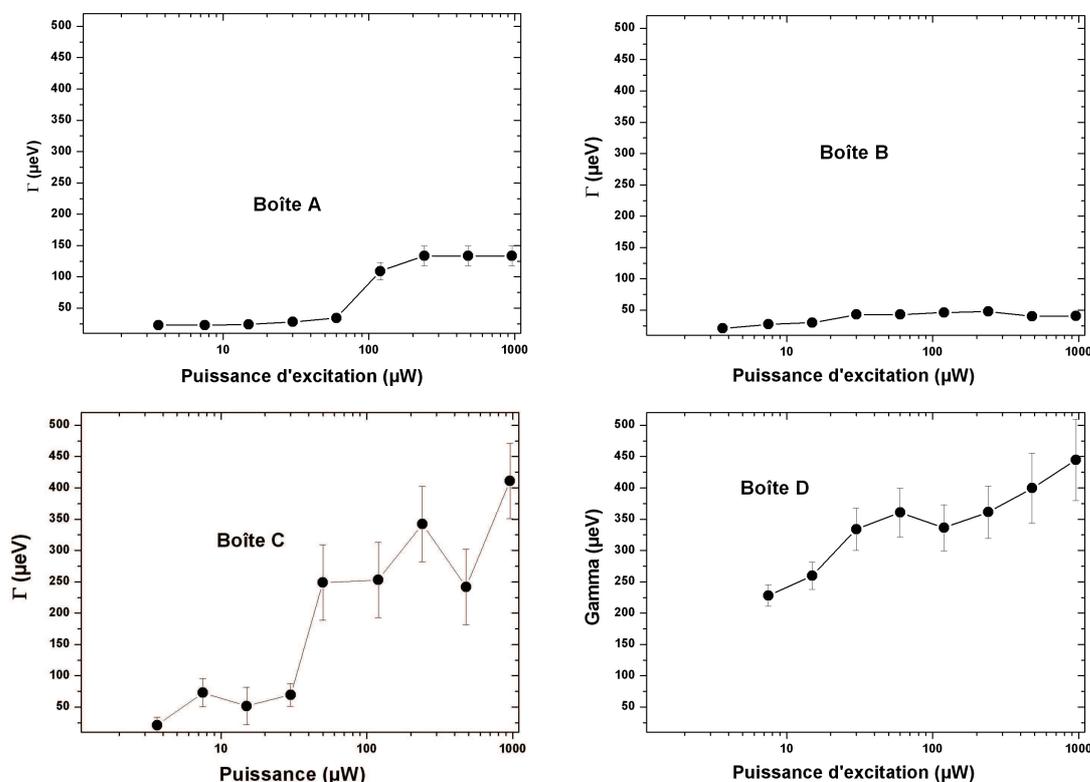


FIG. 3.3.2 – *Elargissement à 10 K en fonction de la puissance d'excitation de la raie de la transition fondamentale associée aux boîtes quantiques uniques A, B, C et D sous excitation non-résonnante dans le GaAs à l'aide d'un laser à 1.96 eV.*

comportement en puissance est qualitativement le même que sur la boîte A mais avec un élargissement moins important : la largeur de raie à basse puissance est de  $20 \mu\text{eV}$  et elle sature à  $40 \mu\text{eV}$  à haute puissance.

Sur les deux boîtes C et D, la largeur de raie à basse puissance est déjà beaucoup plus grande que sur les boîtes A et B. A  $7.5 \mu\text{W}$ , la raie correspondant à la boîte C a une largeur de  $120 \mu\text{eV}$ , elle sature à haute puissance avec une largeur de  $200 \mu\text{eV}$ . A  $7.5 \mu\text{W}$ , la raie de la boîte D a une largeur de  $240 \mu\text{eV}$  ; elle acquiert à plus haute puissance une largeur de  $440 \mu\text{eV}$ .

Lors de nos travaux sur les processus d'élargissement, nous avons étudié de nombreuses boîtes autres que les 4 que nous présentons ici. Sur l'ensemble de ces boîtes, l'apparition d'un profil de raie lorentzien, qui se traduit par une décroissance exponentielle du contraste de l'interférence en spectroscopie par transformée de Fourier, est la norme.

Pour les deux boîtes quantiques où les raies sont déjà larges à basse puissance d'excitation (les boîtes C et D), les phénomènes d'élargissement en puissance sont

moins importants (la largeur de raie sur la boîte A augmente d'un facteur 6 entre 3.5 et 960  $\mu W$  alors que cette augmentation est de moins d'un facteur 2 sur les boîtes C et D).

Une telle variété de comportement sur 4 boîtes de la même méso montre qu'indépendamment de la présence de la méso, chaque boîte a un comportement qui lui est propre en ce qui concerne l'élargissement de sa raie d'émission.

### Elargissement en puissance à différentes températures

Nous étudions à présent ces phénomènes d'élargissement en puissance d'excitation à différentes températures sur les 4 mêmes boîtes. L'excitation est toujours réalisée dans le GaAs à l'aide d'un laser continu HeNe à 1.96 eV (632 nm) et nous passons en revue le comportement de ces 4 boîtes de 10 à 60 K avec un pas de 10 K.

La figure 3.3.3 présente les résultats obtenus sur les quatre boîtes.

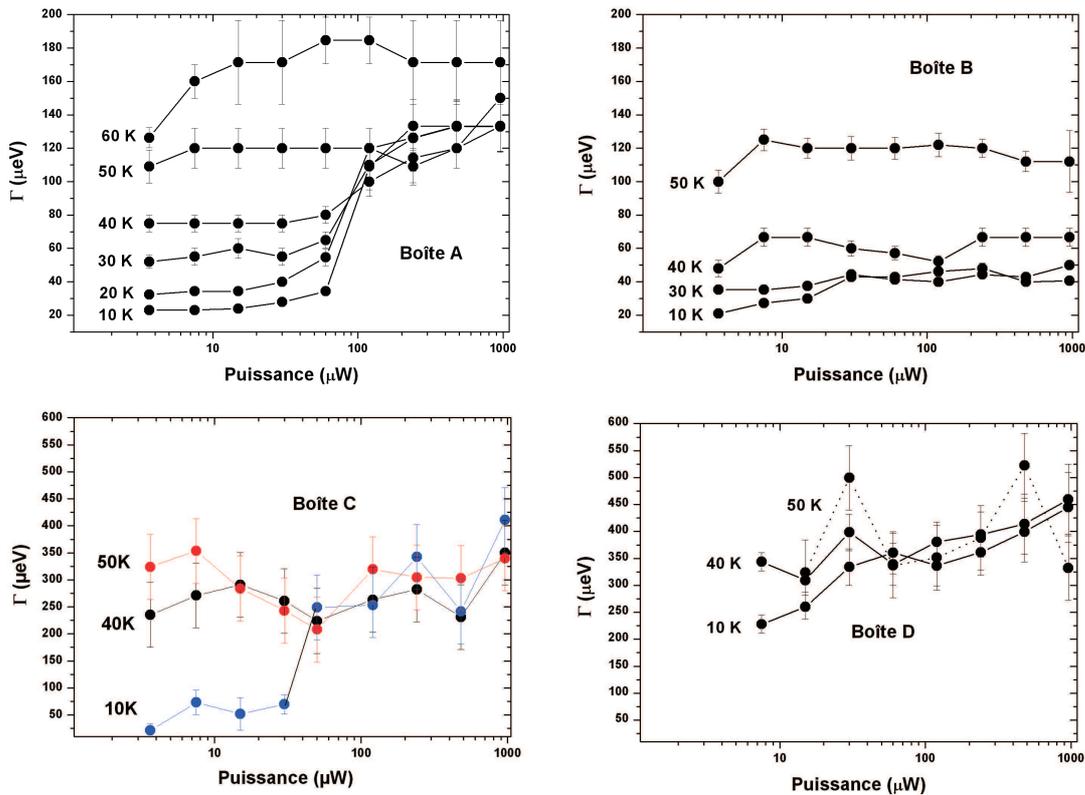


FIG. 3.3.3 – Elargissements en puissance des raies d'émission des quatre boîtes quantiques A, B, C et D à différentes températures, sous excitation non-résonante dans le GaAs à l'aide d'un laser à 1.96 eV.

Nous observons que le comportement d'élargissement en puissance sur la boîte A dépend fortement de la température. Alors qu'il est très marqué à 10 K, où la largeur de raie augmente d'un facteur 6 de 10 à 1000  $\mu W$ , il a tendance à s'amenuiser en augmentant la température. A 50 K, il n'y a presque plus de dépendance en puissance : à très faible puissance (3.7  $\mu W$ ), la largeur de raie est déjà de 110  $\mu eV$ , c'est à dire son niveau à saturation lorsque nous sommes à 10 K, et elle n'évolue quasiment pas en augmentant la puissance d'excitation. Cela suggère que puissance d'excitation et température entre 10 et 50 K sont fortement corrélées dans les processus d'élargissement sur cette boîte. Enfin à 60 K, la raie est élargie à 165  $\mu eV$ , c'est-à-dire au dessus de la valeur à saturation à 10 K, et ce sur toute la gamme de puissance explorée.

Sur la boîte B, nous observons entre 10 et 30 K un comportement similaire à celui de la boîte A entre 10 et 50 K. A 10 K à basse puissance, la largeur de raie est de 20  $\mu eV$  puis elle s'accroît d'un facteur 2 pour être de 40  $\mu eV$  à haute puissance. A 30 K, il n'y a plus d'élargissement en puissance de la raie et sa largeur est celle mesurée à haute puissance à 10 K, à savoir 40  $\mu eV$ . A 40 et 50 K par contre, la raie acquiert une largeur de 60 puis 115  $\mu eV$ , indépendante en première approximation de la puissance d'excitation.

Sur les deux boîtes C et D, nous observons le même phénomène de diminution de l'élargissement en puissance lorsque nous augmentons la température de 10 à 40 K.

### Élargissement en température

Regardons à présent les élargissements en température que nous obtenons sur les 2 boîtes A et B sous différentes puissances d'excitation.

La figure 3.3.4 présente l'élargissement en température de la raie de la transition fondamentale de la boîte A sous deux puissances d'excitation, à 15 et à 120  $\mu W$  ainsi que l'élargissement de la raie d'émission de la boîte B à 15  $\mu W$  d'excitation.

Nous avons vu à la section précédente que plusieurs groupes ont rapporté un élargissement en température de la raie d'émission au niveau de la transition fondamentale décrit par l'équation 3.2.1. Si nous utilisons cette loi pour décrire les trois comportements présentés en figure 3.3.4, nous obtenons les valeurs suivantes pour le coefficient  $a$  : sur la boîte A,  $a(15 \mu W) = 1.5 \pm 0.3 \mu eV/K$  et  $a(120 \mu W) = 0 \pm 0.5 \mu eV/K$  ; sur la boîte B,  $a(15 \mu W) = 0 \pm 0.3 \mu eV/K$ .

Le coefficient  $a$  d'élargissement en température dépend de la puissance d'excitation. Puissance et température sont deux paramètres liés dans les processus d'élargissement de la transition fondamentale à basse température. D'ailleurs sur des boîtes ne présentant sous excitation non-résonante presque aucun élargissement en température entre 0 et 50 K ( $a = 0.05 \mu eV/K$ ), aucun élargissement en puissance n'avait été reporté [50].

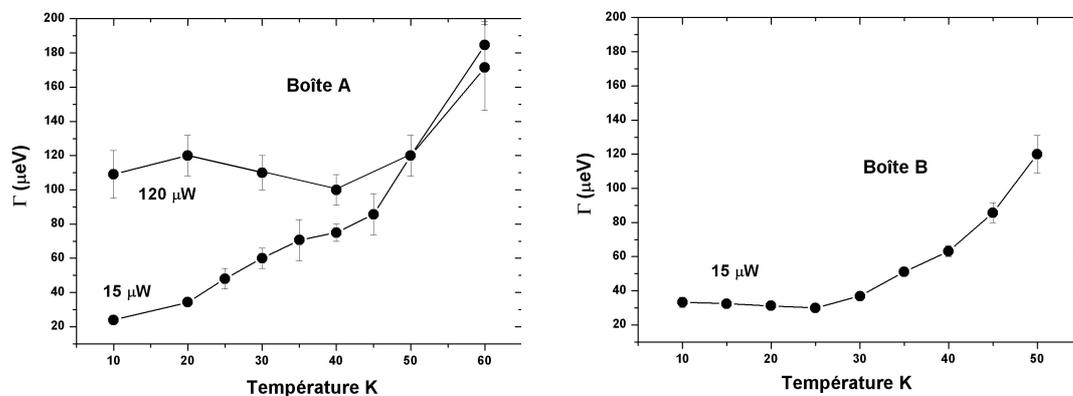


FIG. 3.3.4 – *Elargissement en température de la raie d'émission correspondant à la transition fondamentale des boîtes A et B sous différentes puissances d'excitation.*

### 3.3.3 Modélisation de l'environnement fluctuant

Aleksandar Jankovic a modélisé durant sa thèse l'effet d'un environnement fluctuant autour d'une boîte quantique [43]. Partant, pour décrire la boîte quantique, de l'image d'un système à deux niveaux et, pour décrire les fluctuations de l'environnement, de l'image d'un piège électrostatique environnant occupé ou vide, il a calculé le décalage  $\Delta E$  introduit par effet Stark sur la raie d'émission de la boîte lors de l'occupation du piège. Ce décalage pour un piège à 20 nm de la boîte est de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu eV$ . A partir de ce résultat, il a ensuite étudié les différents régimes de piégeage et de dépiégeage d'un porteur et a exploré ainsi différentes situations dynamiques pour l'environnement de la boîte avant de généraliser au cas de  $N$  pièges équivalents.

Lorsque le piégeage et le dépiégeage du porteur se produisent en un temps qui est long devant le processus d'émission d'un photon par le système à deux niveaux, on obtient pour le cas du piège unique un profil spectral d'émission de la boîte qui contient deux raies : une correspondant au piège vide et l'autre au piège occupé. C'est le régime de diffusion spectrale : si les pièges sont nombreux, la raie d'émission se déplace en énergie avec des temps caractéristiques variés qui sont ceux du peuplement et dépeuplement des pièges. Si ces déplacements se produisent plus vite que le temps de réponse du détecteur dans une expérience, le spectre obtenu a un profil qui correspond à la distribution statistique des décalages Stark. Si cette distribution est gaussienne, le spectre est gaussien. Si ces déplacements se produisent plus lentement que la réponse du détecteur, on résout dans le temps les déplacements en énergie de la raie d'émission, ce qu'a fait Lucien Besombes pendant sa thèse sur une boîte quantique de matériaux II-VI [84].

Lorsque les processus de piégeage et dépiégeage se produisent en revanche

à une échelle de temps qui est plus petite que le processus radiatif, le profil d'émission est tout autre : il s'agit d'une unique raie, dont la largeur dépend des décalages Stark introduits par les pièges et de la dynamique des pièges. Dans le cas d'un piège unique, plus cette dynamique est rapide et moins le processus radiatif a le temps de voir les deux configurations du piège occupé ou vide. Il ne voit qu'une configuration qui est la moyenne dynamique des deux autres : c'est le régime de rétrécissement par le mouvement ("motional narrowing"), bien connu en résonance magnétique nucléaire. L'unique raie d'émission a une largeur plus petite que la superposition des deux précédentes.

Dans le cas d'une multitude de pièges de dynamique assez rapide pour être dans le régime de rétrécissement par le mouvement, la raie d'émission est homogène, lorentzienne et sa largeur est déterminée par la morphologie des pièges et leur dynamique.

Dans le cas de  $N$  pièges équivalents, nous pouvons décrire un peu plus précisément ces deux régimes d'élargissement. Le décalage Stark induit par chaque piège est  $\Delta E$  et nous notons  $\tau_0$  le temps moyen de changement de la configuration électrostatique de l'ensemble des pièges. Si  $\tau_{\downarrow}$  est le temps nécessaire à l'occupation d'un piège vide et  $\tau_{\uparrow}$  le temps nécessaire à la libération d'un piège occupé alors :

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{1}{\tau_{\downarrow}} + \frac{1}{\tau_{\uparrow}} \quad (3.3.1)$$

Si au bout d'un temps  $t = n\tau_0$ , il y a eu  $n_{\downarrow}$  évènements d'occupation d'un piège vide et  $n_{\uparrow}$  évènements de libération d'un piège occupé, avec  $n_{\downarrow} + n_{\uparrow} = n$ , le décalage en énergie de la raie d'émission par rapport à sa position de référence est à l'instant  $t$  :

$$\hbar\Delta\omega(t) = \Delta n * \Delta E \quad (3.3.2)$$

où  $\Delta n = |n_{\downarrow} - n_{\uparrow}|$ .

La dispersion dans le temps de ce décalage en énergie est :

$$\hbar(\overline{\Delta\omega^2})^{\frac{1}{2}} = (\overline{\Delta n^2})^{\frac{1}{2}} * \Delta E \quad (3.3.3)$$

et l'accumulation moyenne de phase de l'exciton dans la boîte lors d'un changement de configuration électrostatique de l'ensemble des pièges s'écrit

$$\int \Delta\omega dt \simeq (\overline{\Delta\omega^2})^{\frac{1}{2}} * \tau_0 \quad (3.3.4)$$

Si cette accumulation moyenne de phase est grande, ie si  $(\overline{\Delta\omega^2})^{\frac{1}{2}} * \tau_0 \gg 1$ , nous sommes dans un régime de fortes perturbations, encore appelé régime de diffusion spectrale : dans ce cas le spectre d'émission est constitué d'une superposition de composantes lorentziennes de largeur proportionnelle à  $\frac{1}{\tau_0}$ . Si la distribution de

ces composantes est gaussienne et si le détecteur a un temps d'acquisition bien plus long que  $\tau_0$ , alors l'émission observée a un spectre gaussien.

Si en revanche l'accumulation moyenne de phase est petite, ie si  $(\overline{\Delta\omega^2})^{\frac{1}{2}} * \tau_0 \ll 1$ , nous sommes dans le régime de faible perturbation, encore appelé régime de rétrécissement par le mouvement. Le spectre d'émission devient lorentzien, avec une largeur à mi-hauteur qui est  $(\overline{\Delta\omega^2}) * \tau_0$  [86].

Dans cette image, le nombre de pièges équivalents disponibles autour de la boîte est infini. L'augmentation de la puissance d'excitation sur une boîte quantique donnée permet de peupler plus de pièges et aussi d'avoir une variance plus élevée du paramètre  $\Delta n$  : il en résulte un élargissement de la raie d'émission de la boîte. Si nous considérons maintenant un nombre fini  $N$  de pièges disponibles, cet élargissement doit saturer à haute puissance d'excitation puisque nous ne pouvons pas augmenter indéfiniment le nombre de pièges occupés.

Enfin, une augmentation de la température favorise les événements de libération des pièges occupés (l'énergie thermique  $kT$  est capable de faire sortir un porteur d'un piège si la profondeur du piège est comparable ou plus petite que  $kT$ ). La température joue donc dans l'image de l'environnement fluctuant un rôle sur le paramètre  $\tau_0$ .

Une analyse théorique plus complète est en cours au laboratoire pour comprendre plus en détail les phénomènes de saturation dans le cas d'un nombre fini de pièges et le rôle de la température dans le cadre de ce modèle.

### 3.3.4 Discussion

Dans les 4 boîtes quantiques InAs/GaAs que nous avons étudiées, nous avons observé un élargissement de la raie d'émission avec la température et avec la puissance lumineuse d'excitation.

Nous observons sur la boîte A entre 50 et 60 K une transition dans le comportement d'élargissement en température : l'élargissement de la raie entre 50 et 60 K est non nul et indépendant de la puissance d'excitation (figure 3.3.3), alors qu'il dépendait de cette puissance entre 0 et 50 K. Le seuil d'activation de 50 K pour ce phénomène indique que le mécanisme d'élargissement correspondant repose sur l'apparition de modes de phonons optiques dans le système. C'est le mécanisme que nous avons déjà discuté plus tôt et qui donne naissance au terme  $b \exp(-\hbar\omega_0/kT)$  dans l'expression de l'équation 3.2.1. Il apparaît également, à 40 K, dans l'émission de la boîte B, qui présente un élargissement indépendant de la puissance d'excitation entre 40 et 50 K (figure 3.3.3).

A basse température (10 K par exemple), l'élargissement en puissance d'excitation de la raie d'émission de chacune des 4 boîtes provient d'une modification, induite par l'augmentation de la puissance d'excitation, de l'environnement fluctuant autour de chaque boîte. Dans l'image du régime lorentzien d'élargissement,

cela signifie que le paramètre  $(\overline{\Delta\omega^2}) * \tau_0$  augmente avec la puissance d'excitation. Nous pensons que c'est principalement la variance  $(\overline{\Delta\omega^2})^{\frac{1}{2}}$  qui augmente avec la puissance d'excitation : en augmentant cette dernière, un plus grand nombre de porteurs est créé dans l'environnement de la boîte, ce qui permet d'augmenter le nombre d'événements de piègeage et aussi peut-être le nombre de pièges mis à contribution.

La modélisation de l'environnement fluctuant par Aleksandar Jankovic permet de faire un lien entre nos boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs, sur lesquelles les raies ont majoritairement un profil lorentzien, et d'autres systèmes comme les nanocristaux de CdSe [82], les boîtes InP [83] ou CdTe [84], dans lesquelles des régimes de diffusion spectrale sont plus souvent observés. Un travail expérimental est en cours au laboratoire pour tenter d'observer un régime de diffusion spectrale sur les boîtes InAs/GaAs, ce qui pourrait se traduire par un profil gaussien des raies d'émission. Pour observer ce régime, il faut pouvoir distinguer un profil lorentzien d'un profil gaussien dans notre montage de spectroscopie par transformée de Fourier, ce qui s'avère difficile à cause de la largeur spectrale finie de la fonction de réponse de notre montage (1.8 meV), qui a tendance à transformer en profil gaussien tout profil lorentzien large (de plus de 600  $\mu\text{eV}$ ).

Nous avons vu sur les 4 boîtes A,B,C et D qu'élargissements en puissance et en température sont fortement liés pour la gamme de température 0-50 K. C'est pourquoi nous interprétons également les élargissements linéaires en température observés à basse température comme le résultat d'une modification, induite par la hausse de température cette fois, de l'évolution dynamique de l'environnement fluctuant.

Lorsque la température augmente entre 0 et 50 K, les pièges ne sont plus tous occupés (comme c'est le cas à 10 K) et les fluctuations électrostatiques de l'environnement deviennent possibles. L'augmentation de la température influence le temps de dépiégeage d'un piège et donc les paramètres  $(\overline{\Delta n^2})^{\frac{1}{2}}$  et  $\tau_0$  dans la vision des N pièges équivalents.

La température  $T_s$  pour laquelle la largeur de raie  $\Gamma$  ne dépend plus de la puissance d'excitation nous donne une indication de l'énergie de liaison des N pièges équivalents : à cette température  $T_s$ , l'énergie thermique est capable de dépiéger les porteurs suffisamment efficacement pour que l'ensemble des configurations électrostatiques de l'environnement fluctuant soit exploré sans avoir besoin d'augmenter la puissance d'excitation.

Nous pouvons extraire des données de la figure 3.3.3 les valeurs suivantes :  $T_s = 50 \text{ K}$  pour la boîte A (énergie de liaison des pièges 5 meV) et  $T_s = 30 - 40 \text{ K}$  pour la boîte B (énergie de liaison des pièges 3 - 4 meV).

Dans toutes les boîtes, la largeur de raie à 10 K et à basse puissance d'excitation apporte une indication sur le degré d'activation de l'environnement fluctuant autour de la boîte. C'est l'environnement fluctuant qui est responsable

de la largeur de raie à température "nulle".

Notre étude sur ces quatre boîtes apporte des éléments de réponse aux questions soulevées par l'observation d'élargissements en température de la transition fondamentale avec des résultats si dispersés. L'élargissement en température dépend des conditions d'excitation, puisque celles-ci peuvent affecter le niveau d'activation de l'environnement fluctuant. Il est également fonction de la morphologie de l'environnement de la boîte : par exemple sur un autre échantillon que celui que nous présentons ici, Cécile Kammerer avait durant sa thèse [50] mesuré des facteurs linéaires d'élargissement  $a$  en température très faibles (de 0.05 à 0.1  $\mu\text{eV}/\text{K}$ ) sous excitation non-résonante alors qu'elle n'observait pratiquement aucun élargissement en puissance : cela signifie qu'il y avait très peu de fluctuations de l'environnement à activer en moyenne sur cet échantillon, c'est à dire que l'environnement des boîtes était assez "propre". Sur l'échantillon A sur lequel nous avons étudié les quatre boîtes A,B,C et D il en va autrement et l'environnement des boîtes semble présenter en moyenne des fluctuations plus importantes.

Notons ici que c'est le fait que nous travaillons sous excitation non-résonante qui nous permet de sonder aisément l'environnement fluctuant de la boîte à 10 K en jouant sur la puissance d'excitation lumineuse. Sous excitation strictement résonante, l'activation de l'environnement est réduite, comme l'avait montré Cécile Kammerer dans sa thèse [50] et l'élargissement de la transition fondamentale en puissance doit être plus faible, proche de ce que rapporte Stuffer à l'aide d'une boîte sondée en photocourant sous excitation résonante dans une structure Schottky [87].

Notre étude permet également de comprendre certains résultats récents de Wolfgang Langbein qui font état d'élargissements thermoactivés à basse température, avec des énergies d'activation variables d'un échantillon à l'autre (10 meV dans [88] et 6 meV dans [68]) : dans ces expériences de mélange à quatre ondes, la transition fondamentale est excitée de façon résonante et l'environnement fluctuant est donc peu activé à basse température, il faut alors augmenter la température au delà de l'énergie d'activation de l'environnement, c'est à dire l'énergie de liaison des pièges, pour observer des élargissements des transitions. Il est à cet égard intéressant de constater que nos mesures sur les boîtes A et B donnent des énergies d'activation de 4 et 5 meV, du même ordre de grandeur que les valeurs de 6 et 10 meV reportées par Wolfgang Langbein.

Le fait ici que nous observons une telle diversité de comportement sur une seule et même méso nous montre que c'est de boîte à boîte que les différences surviennent et pas de méso à méso, contrairement à ce que rapporte Ortner [76]. Chaque boîte possède un environnement fluctuant qui lui est propre et qui se révèle dans les phénomènes d'élargissement (en température et en puissance) et dans la valeur de la largeur de raie d'émission de la boîte à température "nulle".

### 3.3.5 "Métastabilité" de l'environnement

Nous mettons en lumière en dernier lieu l'apparition, dans notre étude des phénomènes d'élargissement, de comportements caractéristiques de métastabilités de l'environnement électrostatique des boîtes quantiques. En réalisant à plusieurs reprises, sur plusieurs jours d'expérimentation, une étude sous excitation non-résonante à basse puissance de la largeur de raie d'une boîte quantique d'une autre méso en fonction de la température, il nous est arrivé d'observer des élargissements en température très différents d'un jour à l'autre (voir figure 3.3.5). Sur une boîte montrant un facteur  $a=3.5 \pm 0.3 \mu\text{eV}/\text{K}$  un jour donné, nous avons observé un facteur  $a=2 \pm 0.3 \mu\text{eV}/\text{K}$  cinq jours plus tard et enfin à nouveau une valeur de  $a=3.5 \pm 0.3 \mu\text{eV}/\text{K}$  après deux jours d'attente additionnelle. Parallèlement, la valeur de la largeur de raie à 5 K a varié de 7 à 26  $\mu\text{eV}$ . Un tel comportement ne s'est produit qu'une unique fois dans toutes nos séries d'expériences mais est tout de même démonstratif : à la fin d'une journée d'expérimentation, nous réchauffons toujours notre cryostat à température ambiante et ne redescendons à basse température que le lendemain. Il apparaît que de tels cycles nous amènent, certes rarement, à figer, en descendant à basse température, l'environnement de la boîte dans un état métastable ou un autre, ce qui résulte en des phénomènes d'élargissement différents d'un jour à l'autre.

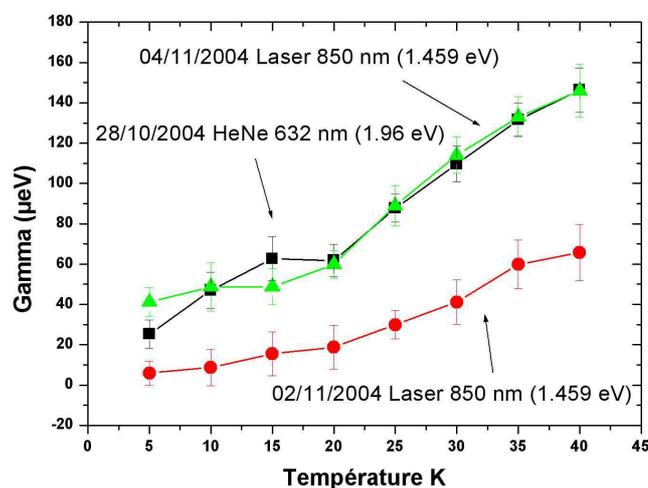


FIG. 3.3.5 – Largeurs de raie en fonction de la température pour la transition fondamentale d'une même boîte quantique à quelques jours d'intervalle sous excitation non-résonante à l'HeNe ou à la diode laser.

Ce résultat est corroboré par des observations faites dans le groupe de Khaled Karrai en absorption sur boîte unique [89]. Dans une expérience d'absorption à basse température, on observe sur une boîte unique une raie unique d'absorption

fine. Comme dans nos expériences, le cryostat subit des cycles de montée-descente entre 5 K et la température ambiante d'un jour à l'autre. Alexander Högele a observé plusieurs fois durant son travail de thèse sur ce montage, sur différentes boîtes uniques en place depuis plusieurs jours et ne présentant qu'une raie d'absorption, l'apparition à l'issue d'une nouvelle descente à 5 K d'une seconde raie d'absorption. A chaque fois qu'une telle apparition est survenue, il a été possible en remontant la température de quelques dizaines de Kelvins de voir disparaître cette seconde raie d'absorption pour ensuite n'avoir plus qu'une raie en redescendant à 5 K. Dans l'image de l'environnement fluctuant avec un seul et unique piège, cela signifie que d'une descente à basse température à une autre, l'état de l'environnement de la boîte n'est pas le même : dans un cas, il est activé et les deux configurations du piège sont explorées dynamiquement à 5 K, donnant lieu à l'apparition de deux raies d'absorption, dans l'autre cas, il n'est pas activé et une unique raie est présente en absorption.

Nous avons donc deux indices de comportements métastables de l'environnement fluctuant des boîtes, qui expliquent les différences dans les largeurs de raie mesurées sur une même boîte d'un jour à l'autre et met l'accent encore une fois sur le caractère non-intrinsèque aux boîtes de leurs propriétés de décohérence optique à basse température.

### 3.4 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre donné une description de la décohérence à basse température (0 à 50 K) de l'exciton fondamental d'une boîte quantique InAs/GaAs auto-assemblée.

Le couplage non-perturbatif de l'exciton aux phonons acoustiques confère à l'excitation élémentaire dans la boîte un caractère mixte (exciton+phonons acoustiques) dont nous avons vu une signature dans les spectres de photoluminescence via l'apparition d'ailes autour d'une raie lorentzienne centrale à zéro phonon. Notre étude expérimentale et théorique montre que cet effet dépend peu des matériaux retenus pour la fabrication des boîtes : il est le résultat d'un mode de couplage aux phonons acoustiques qui est intrinsèque aux boîtes quantiques. Il participe par ailleurs fortement à l'élargissement homogène des raies de photoluminescence à haute température. A 100 K, nos données montrent que les ailes, qui dominent l'allure générale de la raie d'émission, ont une extension spectrale de l'ordre de 2 meV. A 300 K, la largeur homogène de la raie d'émission est de l'ordre de 5 meV [26].

Entre 0 et 50 K en revanche, ce couplage non-perturbatif aux phonons acoustiques ne permet pas de comprendre l'élargissement de la raie à zéro phonon et nous avons vu qu'aucune des explications avancées pour l'instant à ce sujet n'est satisfaisante.

Par une étude systématique sur plusieurs boîtes dans une même mésa, nous avons mis en évidence la présence autour de chaque boîte d'un environnement fluctuant, propre à chaque boîte, dont nous pouvons activer les fluctuations par une hausse de la température ou de la puissance lumineuse d'excitation. Les rôles de ces deux paramètres apparaissent intimement liés. Notamment, nous montrons que l'élargissement en température de la raie à zéro phonon entre 10 et 50 K peut dépendre de la puissance d'excitation retenue. Ces résultats suggèrent que l'environnement fluctuant apporte une contribution importante à l'élargissement en température de la raie à zéro phonon et nous pensons qu'il détermine également la largeur de la raie à zéro phonon à température nulle.

Les propriétés de cohérence de l'exciton fondamental dans une boîte quantique InAs/GaAs à basse température apparaissent finalement être extrêmement dépendantes de l'environnement de la boîte : modes de phonons acoustiques du cristal et environnement électrostatique. Si le couplage aux phonons acoustiques est intrinsèque à notre système et ne peut être réduit, l'influence de l'environnement fluctuant est en revanche extrinsèque et devrait pouvoir être réduite dans des échantillons plus "propres".

Pour limiter la décohérence de l'exciton fondamental, nos travaux montrent finalement qu'il faut travailler à basse température ( $< 40$  K) et proche de la résonance. Il suggèrent également que la réalisation d'échantillons plus "propres" devrait permettre de relaxer partiellement ces deux contraintes : sans environnement fluctuant autour de la boîte, la largeur de la raie correspondant à la transition fondamentale doit peu dépendre de la température en dessous de 40 K et peu dépendre des conditions d'excitation. L'amélioration des échantillons devrait à cet égard assouplir les conditions d'utilisation de la transition fondamentale dans la cadre du traitement quantique de l'information.



# Chapitre 4

## Structure fine de l'exciton et anisotropie optique

Plusieurs études expérimentales ont suggéré que les boîtes épitaxiées étaient fréquemment allongées selon l'axe cristallographique  $[1\bar{1}0]$  [11, 90, 91, 92]. Dans le cas d'une telle boîte allongée, l'interaction d'échange électron-trou confère à la transition fondamentale de la boîte une structure fine qui a été mise en évidence pour la première fois par Gammon sur des boîtes uniques formées aux défauts d'interface dans un puits quantique mince GaAs/AlAs [11]. Cette structure fine comprend deux transitions polarisées linéairement selon les axes cristallographiques  $X = [1\bar{1}0]$  et  $Y = [110]$ , de forces d'oscillateur comparables et séparées par un splitting d'échange de  $20 - 50 \mu eV$  dans [11] : elle est la signature optique de la présence de deux états excitoniques radiatifs  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Depuis cette étude, de nombreux travaux ont confirmé l'existence de cette structure fine : sur des boîtes InAs/GaAs, les valeurs du splitting s'étalent de  $10 \mu eV$  [85] ou  $40 \mu eV$  [93] à  $150 \mu eV$  [94]. Sur des boîtes CdTe/ZnTe, elles varient de  $60$  à  $590 \mu eV$  [84] et peuvent atteindre  $1 \text{ meV}$  sur des boîtes CdSe/ZnSe [95]. Toutes les études sur les boîtes InAs/GaAs rapportent des forces d'oscillateur très similaires pour les deux transitions polarisées linéairement et proposent sur le plan théorique une description de la structure fine en considérant des états de valence de type trou lourd et des forces d'oscillateur des deux transitions polarisées linéairement strictement égales. Seules les études réalisées par Besombes [84] dans CdTe/ZnTe font mention d'un rôle joué par les états de trous légers. Or la symétrie des états de valence impliqués dans la transition fondamentale ainsi que l'anisotropie optique pouvant résulter d'une différence entre les deux forces d'oscillateur selon  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$  sont d'une importance primordiale tant pour la problématique de la manipulation du spin dans les boîtes quantiques que pour les applications nécessitant un contrôle fin des propriétés de polarisation des boîtes.

Dans le cadre du traitement quantique de l'information par exemple, Benson a proposé en 2000 l'utilisation d'une cascade radiative bi-excitonique dans

une boîte quantique pour produire des paires de photons intriqués en polarisation [96], s'inspirant ainsi des sources atomiques de photons intriqués utilisant les transitions à deux photons dans les atomes de Sodium [53]. Dans le cas où il y a deux excitons dans une boîte quantique, la recombinaison radiative d'un des deux excitons laisse l'autre dans l'état excitonique  $|X\rangle$  ou  $|Y\rangle$ . Lors de la cascade radiative bi-excitonique, les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont donc les deux états intermédiaires possibles du processus et ils correspondent à deux chemins quantiques différents (figure 4.0.1). Pour observer une intrication entre les paires de photons émis lors de la cascade, il faut que ces deux chemins soient indiscernables : on ne doit pas pouvoir déterminer si le processus est passé par l'état  $|X\rangle$  ou par l'état  $|Y\rangle$ , ce qui nécessite que le splitting d'échange entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  soit plus petit que la largeur radiative de la raie d'émission. Pour que les deux chemins soient équilibrés, il faut aussi que les forces d'oscillateurs des transitions associées aux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  soient les mêmes. A ce jour, aucun groupe n'a pu observer d'intrication entre les paires de photons émis lors d'une telle cascade dans une boîte quantique [97, 98]. Une compréhension plus détaillée de la structure fine de la transition fondamentale amène des informations primordiales aux expérimentateurs travaillant dans cette voie.

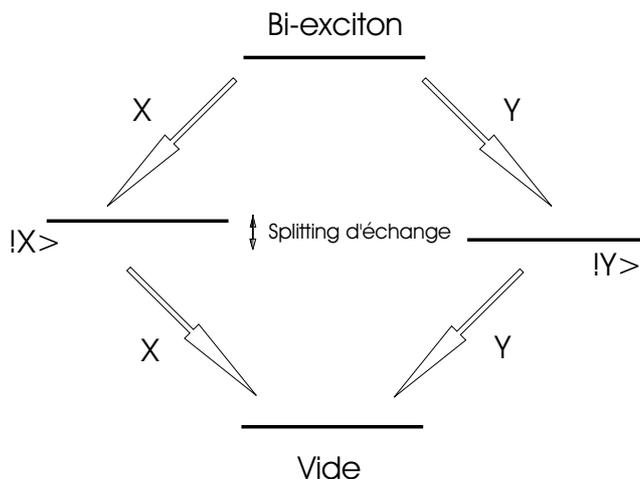


FIG. 4.0.1 – *Cascade radiative bi-excitonique dans une boîte quantique.*

Dans ce chapitre, nous allons au paragraphe 4.1 étudier systématiquement le splitting d'échange et les forces d'oscillateur au sein de la transition fondamentale sur des boîtes InAs/GaAs de morphologie différente se trouvant dans des échantillons à faible et forte densité surfacique de boîtes quantiques.

Dans le paragraphe suivant 4.2, nous présenterons en détail une modélisation de la structure fine qui nous permet de calculer le splitting d'échange et les forces d'oscillateur lorsque l'exciton fondamental est construit à partir d'un électron et d'un trou lourd, puis nous discuterons de la validité de cette représentation. Pour les boîtes des échantillons à forte densité (zone dense), nous verrons que la vision

fondée sur les trous lourds permet de décrire la structure fine de la transition fondamentale ainsi que la légère anisotropie de polarisation linéaire observée. En revanche, dans les échantillons à faible densité de boîtes (zone diluée), nous observons sur boîte unique des anisotropies de polarisation géantes (jusqu'à 80 % de taux de polarisation linéaire de la luminescence) qui montrent qu'il faut aller plus loin qu'une description fondée sur les trous lourds pour comprendre la transition fondamentale.

A cet égard, nous étudierons sous champ magnétique au paragraphe 4.3 la photoluminescence d'une boîte unique en zone diluée présentant une forte anisotropie de polarisation, afin d'obtenir des informations supplémentaires sur la symétrie des états impliqués dans sa transition fondamentale.

## 4.1 Structure fine d'une zone dense à une zone diluée

### 4.1.1 Approche expérimentale de la structure fine

Nous nous intéressons à la structure fine de l'exciton dans une boîte quantique et à la polarisation de l'émission produite par la recombinaison radiative de cet exciton.

La structure fine est étudiée sur un ensemble de boîtes quantiques de l'échantillon E par Emilie Aubry à l'Institut des Nanosciences de Paris à l'aide d'une expérience de battements quantiques et nous l'explorons sur boîte unique à l'aide d'expériences de micro-photoluminescence résolue en polarisation. La polarisation de l'émission est étudiée sur un ensemble de boîtes et sur boîte unique en réalisant des expériences de macro et micro-photoluminescence résolue en polarisation.

Les expériences de macro-photoluminescence sur un ensemble de boîtes sont réalisées à 300 K sur l'échantillon E présenté au chapitre II à l'aide du montage de la figure 2.1.1. L'excitation de la luminescence s'effectue de façon non-résonante à 1.46 eV (850 nm) avec un laser Titane-Saphir. La raie de photoluminescence des boîtes sur cet échantillon a une largeur inhomogène de 80 meV et est centrée à 1.28 eV (voir figure 2.1.2). Nous menons sur cet échantillon une expérience d'analyse de la luminescence en polarisation selon les deux axes cristallographiques orthogonaux  $[1\bar{1}0]$  et  $110$ . Nous noterons  $X = [1\bar{1}0]$  et  $Y = [110]$  : puisque ce sont les axes cristallographiques, ce sont aussi les axes de clivage naturel de l'échantillon et nous prendrons donc les bords de l'échantillon comme repères pour ces axes.

Les expériences de micro-photoluminescence sur boîtes quantiques uniques sont effectuées sur les quatre échantillons A,B,C et D introduits à la fin du chapitre II à l'aide du montage présenté en figure 2.1.5. Rappelons que A et

C sont des échantillons de type zone frontière à faible densité de boîtes ( $10^7$  à  $10^{10}$  boîtes/ $cm^2$ ) alors que B et D, échantillons de type zone 3D, présentent eux de fortes densités de boîtes ( $10^{10}$  à  $10^{12}/cm^2$ ). Ces quatre échantillons sont microstructurés en surface à l'aide de mésas carrées de taille allant de 100 nm à 10  $\mu m$ . Nous travaillons sur ces échantillons à 10 K en excitant la photoluminescence des boîtes uniques de façon non-résonante avec un laser He-Ne à 1.96 eV. L'analyse en polarisation est également faite selon les deux axes  $X = [\bar{1}\bar{1}0]$  et  $Y = [110]$  parallèles aux bords des échantillons.

En évoluant du cas d'un ensemble dense de boîtes vers les cas de boîtes uniques en zone dense puis en zone diluée, nous allons présenter de façon systématique une analyse du splitting d'échange et de l'anisotropie des forces d'oscillateur au sein de la structure fine.

### 4.1.2 Zone dense et expériences sur un ensemble de boîtes

Nous étudions dans cette section l'échantillon E par des expériences sur un ensemble de boîtes.

Par une expérience de photoluminescence sur un tel ensemble, nous n'avons pas accès au splitting au sein de la structure fine de la transition fondamentale. En effet, l'énergie caractéristique de ce splitting est de 10  $\mu eV$ , alors que la raie inhomogène de photoluminescence sur un ensemble fait plusieurs dizaines de meV de large : sur un spectre de photoluminescence, l'élargissement inhomogène interdit l'observation de la structure fine.

Nous obtenons des informations sur le splitting d'échange grâce à des expériences menées dans le groupe de Maria Chamarro à l'Institut des Nanosciences de Paris. Dans ces expériences de type pompe-sonde résolues en polarisation, les boîtes quantiques sont excitées à la résonance à l'aide d'un faisceau de pompe issu d'un laser Titane-Saphir en mode impulsionnel. La polarisation de ce laser étant circulaire  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , il crée dans chacune des boîtes une superposition cohérente à poids égal des deux états excitoniques  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  au sein de la structure fine excitonique. En sondant ensuite dans le temps en transmission la composante  $|X\rangle$  de cette superposition à l'aide d'une impulsion polarisée linéairement selon X, des oscillations avec une période de l'ordre de 135 ps sont observées : elles correspondent, au sein de la superposition cohérente créée, à l'évolution oscillante de la population entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Cette évolution se fait avec une période qui est  $h/\Delta$  où  $\Delta$  est l'écart en énergie entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Une oscillation de 135 ps correspond à  $\Delta = 45 \mu eV$  [31, 99]. L'observation de ces oscillations confirme que la structure fine de l'exciton fondamental dans les boîtes de cet échantillon est bien constituée de deux états excitoniques de symétrie X et Y et permet d'accéder à une valeur moyenne du splitting d'échange sur l'ensemble des boîtes sondées dans 1 meV (largeur spectrale de l'impulsion en réalisant l'expérience en mode picoseconde).

Nous reproduisons en figure 4.1.1 la valeur du splitting d'échange en fonction de l'énergie d'émission obtenue par cette méthode par Emilie Aubry à l'INP pour l'ensemble de la distribution inhomogène de boîtes sur l'échantillon E.

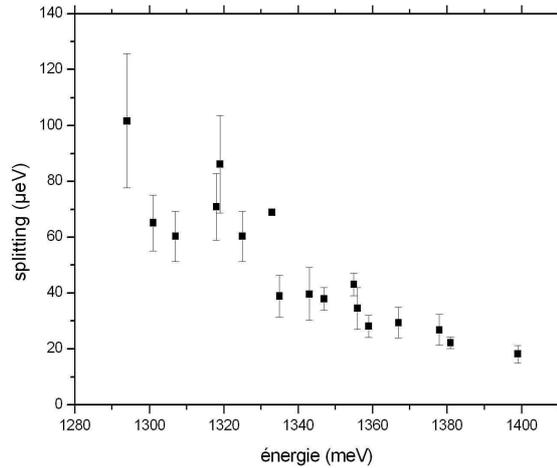


FIG. 4.1.1 – *Splitting d'échange  $\Delta$  en fonction de l'énergie sur l'ensemble de la distribution inhomogène de l'échantillon E.*[99]

Nous y voyons que le splitting d'échange diminue de façon monotone de 100 à 20  $\mu\text{eV}$  avec l'énergie d'émission des boîtes quantiques au sein de la distribution inhomogène de l'échantillon E. La valeur moyenne de ce splitting est 40  $\mu\text{eV}$  avec un écart-type également de 40  $\mu\text{eV}$ .

Nous présentons à présent nos résultats de macro-photoluminescence résolue en polarisation sur le même échantillon E.

La figure 4.1.2 présente deux spectres de photoluminescence à 300 K des boîtes quantiques de l'échantillon E, sous excitation continue non-résonante à 1.46 eV dans le continuum de la couche de mouillage, analysée en polarisation linéaire selon X et Y. Nous avons vérifié que ces spectres ne dépendent pas de la polarisation linéaire du laser Titane-Saphir exciteur : la mémoire de la polarisation de l'excitation est perdue dans cette expérience.

Nous voyons que le signal de photoluminescence est plus élevé lorsque nous l'analysons en polarisation linéaire selon X plutôt que selon Y. Cela signifie qu'en moyenne, sur l'ensemble inhomogène des boîtes sondées dans cette configuration, la force d'oscillateur de la transition linéaire X au sein de la structure fine de la transition fondamentale est plus grande que la force d'oscillateur de la transition Y. De manière générale, pour caractériser cet effet, nous introduisons le taux de polarisation linéaire de la luminescence  $R_L$  :

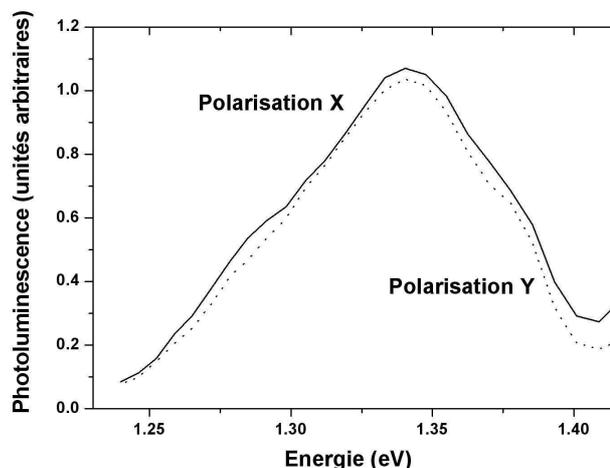


FIG. 4.1.2 – Analyse en polarisation linéaire suivant X et Y de la photoluminescence à 300 K sous excitation non-résonante à 1.46 eV de l'échantillon E. Le taux de polarisation linéaire moyen sur la raie inhomogène est de +9%.

$$R_L = \frac{I_X - I_Y}{I_X + I_Y} \quad (4.1.1)$$

où  $I_X$  et  $I_Y$  sont les intensités de photoluminescence analysée en polarisation selon X et Y.

Le taux de polarisation linéaire moyen de la photoluminescence sur l'ensemble de la raie inhomogène de boîtes de l'échantillon E est de +9%, proche des +12% mesurés dans des conditions similaires sur un autre morceau du même wafer par Cortez [100].

### 4.1.3 Boîtes uniques en zone dense et en zone diluée

#### Analyse expérimentale de la structure fine sur boîte unique

Nous présentons à présent des résultats de micro-photoluminescence sous excitation non-résonante analysée en polarisation selon les axes X et Y sur des boîtes uniques en zone dense et en zone diluée.

Nous montrons ci-après sur trois boîtes quantiques différentes l'allure des spectres de photoluminescence analysée selon X et Y (figure 4.1.3).

Nous ne pouvons pas résoudre de manière directe avec notre montage, qui a une résolution de 150  $\mu\text{eV}$ , les quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$  du splitting d'échange sur boîte unique. Nous collectons spectralement l'intégralité du signal émis par la boîte au niveau de sa transition fondamentale et en sélectionnons les composantes

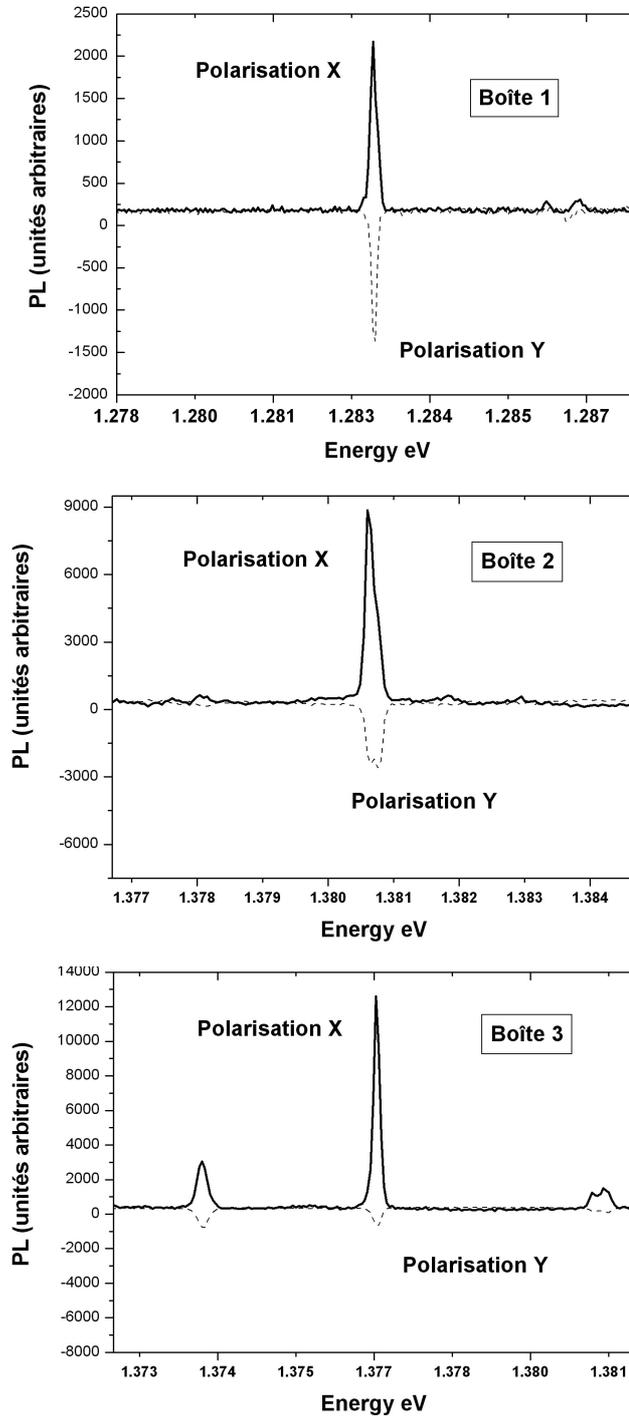


FIG. 4.1.3 – Exemples d'analyse en polarisation linéaire de l'émission de trois boîtes quantiques différentes. En trait plein, l'intensité  $I_X$  de photoluminescence analysée selon X; en pointillés et renversée, l'intensité  $I_Y$  analysée selon Y. Les rapports d'intensité  $I_X/I_Y$  sont de 1.2, 3 et 10 respectivement pour les boîtes 1, 2 et 3.

X et Y en réalisant l'analyse en polarisation linéaire le long des axes X et Y, qui sont parallèles aux bords de l'échantillon.

Il apparaît de façon flagrante sur les trois exemples de la figure 4.1.3 que les intensités de photoluminescence collectées en analysant en polarisation linéaire selon X ou selon Y sont différentes. Sur les boîtes 2 et 3, qui appartiennent à l'échantillon A de type zone frontière, cette différence est très marquée, la boîte 3 ayant un taux de polarisation linéaire  $(I_X - I_Y)/(I_X + I_Y)$  de +82%. Elle l'est beaucoup moins sur la boîte 1, qui appartient à l'échantillon D de type zone dense.

De telles différences entre les intensités de photoluminescence mesurées pour des orientations de l'analyseur parallèles à X et Y, avec une amplitude plus ou moins grande du phénomène, sont le lot commun pour l'ensemble des boîtes que nous avons étudiées. En revanche, si les intensités des composantes X et Y peuvent être différentes, nous avons toujours observé que l'intensité de photoluminescence d'une boîte donnée, en fonction de la direction de polarisation linéaire choisie pour l'analyse, présentait son maximum et son minimum précisément en situation d'analyse en polarisation linéaire selon ces deux axes cristallographiques  $X = [1\bar{1}0]$  et  $Y = [110]$ , montrant qu'ils jouent un rôle privilégié dans les propriétés de polarisation à l'échelle de la boîte unique. Nous avons d'ailleurs observé le même comportement sur la photoluminescence de l'échantillon E d'ensemble de boîtes. Cette constatation expérimentale corrobore les études précédentes de la structure fine de la transition fondamentale sur boîte unique InAs/GaAs [11, 101], qui avaient montré que celle-ci est composée d'un doublet dont les composantes correspondent à une émission de lumière polarisée linéairement selon  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$ . Notre situation diffère en revanche de celle explorée par Besombes [84], qui observe sur des boîtes uniques CdTe/ZnTe une forte dispersion autour de l'axe  $[110]$  de la direction de polarisation linéaire d'une des composantes du doublet.

Dans nos expériences sur boîte unique, les spectres de photoluminescence analysée en polarisation linéaire selon X et Y sur la figure 4.1.3 montrent un décalage spectral de la raie d'émission plus petit que la résolution spectrale du système. Pour essayer de résoudre une structure fine dans ces spectres, nous utilisons une technique de traitement de données que nous appellerons dans la suite technique du profil dispersif. Cette technique repose sur la constatation suivante : si l'on fait la différence entre deux lorentziennes de même largeur mais de norme et d'origine différentes, on obtient, dans les cas où l'écart  $\Delta$  entre les deux lorentziennes est comparable à leur largeur, un profil dispersif dont l'allure est très dépendante de  $\Delta$ . Nous donnons en figure 4.1.4 un exemple d'un tel profil pour  $\Delta = 20 \mu eV$  et des lorentziennes de largeur  $20 \mu eV$  également.

La technique du profil dispersif consiste à reproduire, à l'aide de deux lorentziennes de même largeur, les spectres  $I_X$  et  $I_Y$  de photoluminescence analysée en polarisation linéaire selon X et Y et à ensuite ajuster la différence de ces deux lorentziennes à la différence  $I_X - I_Y$ . Cet ajustement est très sensible

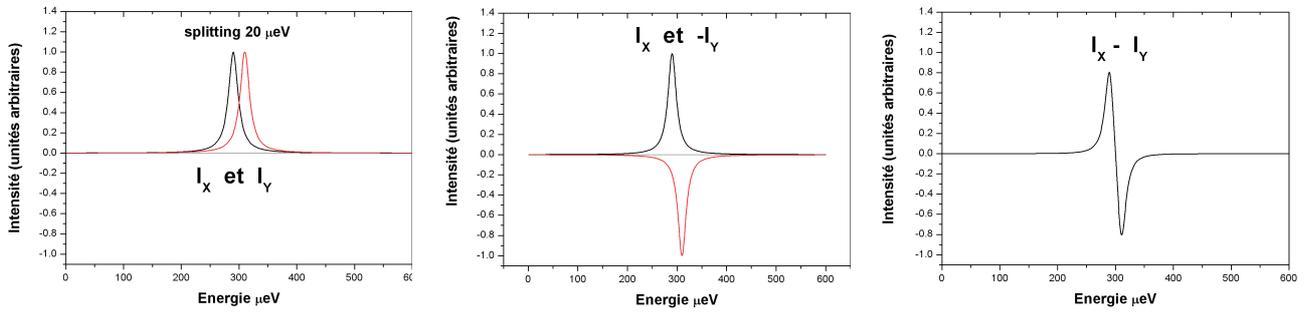


FIG. 4.1.4 – Exemple de profil dispersif créé en effectuant la différence entre deux lorentziennes de même largeur  $20 \mu\text{eV}$ , de même norme et décalées de  $\Delta = 20 \mu\text{eV}$ , c'est-à-dire d'une valeur comparable à leur largeur.

à la valeur de l'écart  $\Delta$  mais sa précision reste limitée par l'échantillonnage spectral que nous faisons des signaux de luminescence. Lorsque nous dispersons ces signaux en sortie du spectromètre sur la barette CCD, nous effectuons en effet un échantillonnage spectral dont le pas est fixé par la taille d'un pixel de la barette. Dans notre configuration, ce pas est de  $45 \mu\text{eV}$ . De plus, lorsque les intensités de photoluminescence  $I_X$  et  $I_Y$  sont très différentes, comme sur la boîte 3 de la figure 4.1.3, ou lorsque le rapport signal de luminescence sur bruit est faible, il est difficile de distinguer un profil dispersif clair dans le spectre de  $I_X - I_Y$  : la procédure d'ajustement perd alors en précision.

Finalement, la technique du profil dispersif est sensible à l'échantillonnage spectral, à l'anisotropie de polarisation du signal étudié et au rapport signal sur bruit. Dans les meilleurs cas, ceux où les normes des deux lorentziennes sont comparables, cette technique nous permet d'extraire des valeurs de  $\Delta$  avec une précision de  $5 \mu\text{eV}$ . Dans les cas où les normes des lorentziennes sont trop différentes, il est difficile d'obtenir une précision aussi bonne et nous n'avons pu généralement que conclure pour  $\Delta$  à des bornes supérieures de l'ordre de  $40 \mu\text{eV}$ .

Nous montrons en figure 4.1.5 les résultats obtenus avec la technique du profil dispersif sur les trois boîtes 1,2 et 3. Pour la boîte 1,  $\Delta=35 \mu\text{eV}$  ; pour la boîte 2,  $\Delta=105 \mu\text{eV}$  et pour la boîte 3,  $\Delta < 40 \mu\text{eV}$ . Nous constatons avec ces trois exemples qu'il nous est possible avec cette technique de résoudre des splittings de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$ . La plus petite valeur que nous ayons pu extraire est de  $7 \pm 5 \mu\text{eV}$ .

A ce stade de notre étude, nous voyons que, premièrement, nous sommes capables, dans certains cas, de résoudre une structure fine dans les spectres de luminescence sur boîte unique, avec des splittings qui sont de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$ . Deuxièmement, cette luminescence au niveau de la transition fondamentale d'une boîte nous apparaît en général polarisée de façon anisotrope, avec pour axes propres X et Y.

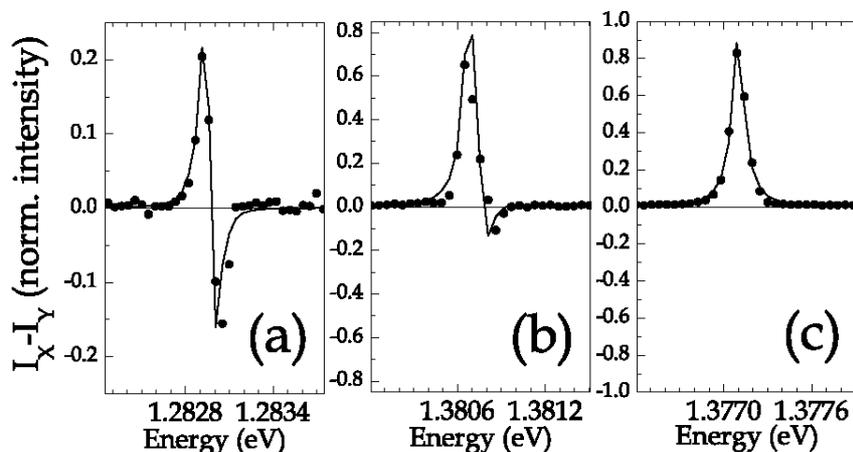


FIG. 4.1.5 – Résultats obtenus grâce à la technique du profil dispersif sur les boîtes 1,2 et 3 (respectivement a, b et c).  $I_X/I_Y=1.2$  (a); 3 (b) et 10 (c).  $\Delta=35 \mu\text{eV}$  (a);  $105 \mu\text{eV}$  (b) et  $< 40 \mu\text{eV}$  (c).

### Effet des mésas

Les quatre échantillons avec lesquels nous avons travaillé sont gravés en surface à l'aide de mésas en forme de parallépipèdes dont les faces sont alignées avec les bords X et Y des échantillons. La taille de ces mésas varie, les arêtes allant de 100 nm à 10  $\mu\text{m}$ . Nous avons voulu vérifier, en premier lieu, si les anisotropies de polarisation que nous observons sur boîte unique ne résultaient pas de la présence de ces mésas. Nous avons cherché à étudier trois effets distincts pouvant être engendrés par leur présence et pouvant mener à l'observation d'anisotropies optiques en polarisation :

1. Une réponse optique anisotrope de la méssa elle-même, qui conduirait à mieux guider dans notre chemin de collection du signal une polarisation donnée par rapport à la polarisation orthogonale.
2. Des effets d'inhibition ou d'amplification de l'émission spontanée des transitions polarisées X ou Y induits par la proximité d'interfaces planaires (vide-méssa) parallèles à X ou Y.
3. La présence de champs de déformations anisotropes sur les bords de méssa produits par la relaxation unidirectionnelle des contraintes le long des parois lors de la gravure.

#### 1. Réponse optique anisotrope des mésas et guidage par les bords

L'utilisation de mésas s'avère très efficace dans les expériences de micro-photoluminescence mais nous devons prendre garde à ce que l'emploi de cette technique ne modifie pas les propriétés optiques des boîtes quantiques que nous étudions. Nous avons en effet observé sur les mésas de taille intermédiaire (1 à 5

$\mu m$ ) que lors de l'optimisation de la position du microscope en collection sur un signal de luminescence de boîte unique, nous étions toujours amenés à positionner le point focal du microscope sur les coins de la méssa, et ce a priori quelle que soit la position de la boîte dans la méssa. Sur des grosses méssas ( $10 \mu m$ ), les coins sont également les endroits optimaux pour collecter le signal d'émission de la couche de mouillage. Ces observations nous montrent que le signal lumineux émis par une boîte est guidé dans le chemin de détection par les bords de la méssa (voir figure 2.1.7).

Si les bords de la méssa guident une partie du signal de luminescence d'une boîte, c'est le bord de méssa le plus proche de la boîte qui va jouer le rôle principal dans ce phénomène.

Ce guidage peut privilégier une des deux polarisations, parallèle ou orthogonale au bord dans le chemin de collection.

Dans le cas d'une boîte proche d'un bord de méssa et assez éloignée des autres bords orthogonaux, nous pourrions observer une polarisation de sa luminescence le long du bord de la méssa.

Nous avons cherché à étudier l'ampleur de ce phénomène sur nos échantillons et avons à cet effet mené plusieurs tests sur des grosses méssas de  $10 \mu m$  de côté sur l'échantillon A, qui présente les anisotropies de polarisation les plus marquées. Nous sommes capables à l'aide de nos déplacements fins piezo-électriques de positionner le point focal du microscope sur la méssa avec une précision de l'ordre du dixième de  $\mu m$  et possédons une capacité d'excursion de  $15 \mu m$  dans les directions X et Y. En se plaçant initialement au centre d'une grosse méssa de  $10 \mu m$  de côté, nous sommes capables de balayer précisément l'ensemble de la méssa.

Sur les grosses méssas, l'optimisation de la position du microscope sur le signal d'une boîte quantique unique nous conduit généralement en direction des bords de la méssa mais pas systématiquement dans les coins. Nous cherchons donc en premier lieu une boîte quantique dont le signal de luminescence est collecté de façon optimale lorsque nous sommes en plein milieu d'un des bords de  $10 \mu m$  de long, afin d'être sûrs que premièrement la boîte est proche du milieu du bord en question et que secondement une large partie du signal collecté passe bien par ce même bord, les autres bords jouant un rôle minime puisqu'ils sont loins.

Nous trouvons deux boîtes de ce type au milieu d'un bord parallèle à X d'une grosse méssa (position P sur la figure 4.1.6). Pour ces deux boîtes, nous gagnons au moins un facteur 2 dans l'intensité de luminescence collectée lorsque nous passons de la situation où le microscope est à l'aplomb de la position C (figure 4.1.6), C et P étant distants de  $2 \mu m$ , à la situation où il est à l'aplomb de P. Puisque la résolution spatiale de notre collection, donnée par la taille de notre spot, est ici de  $2 \mu m$ , cela signifie que dans le signal que nous collectons à la position P sur ces deux boîtes, une composante importante passe par le bord jouxtant la position P.

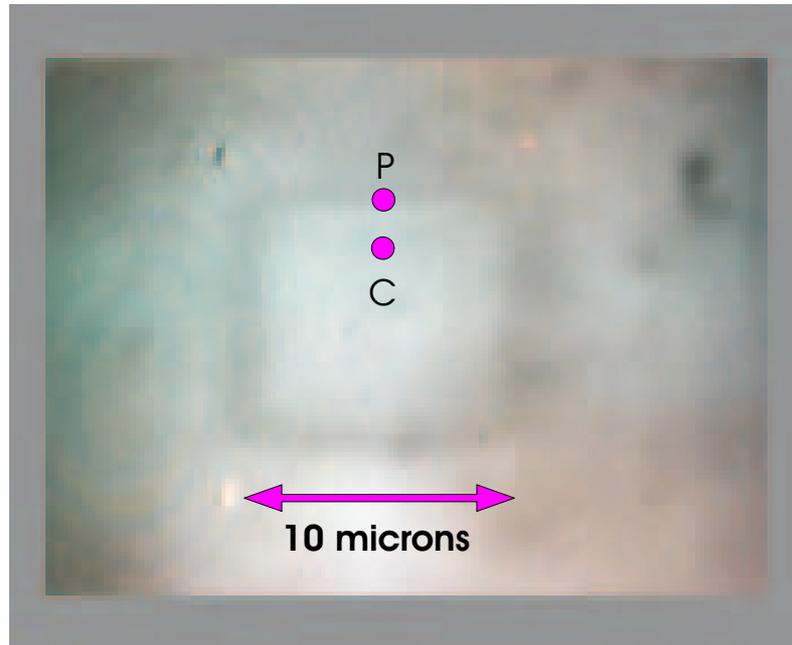


FIG. 4.1.6 – Une grosse méssa de  $10 \mu\text{m}$  de côté vue à travers notre microscope. La position  $P$  correspond au milieu de l'arête supérieure, la position  $C$  est à  $2 \mu\text{m}$  de  $P$  en allant en direction du centre de la méssa.

Nous mesurons le taux de polarisation linéaire  $R_L = (I_X - I_Y)/(I_X + I_Y)$  à la position  $P$  pour les deux boîtes et trouvons  $+43\%$  pour la première et  $-28\%$  pour la seconde. Ces deux boîtes se trouvent le long d'un bord parallèle à  $X$  et en son milieu, donc si leurs propriétés de polarisation étaient déterminées par ce bord, leurs taux de polarisation linéaire devraient au moins avoir le même signe or ce n'est pas le cas. Par ailleurs, de manière générale, nous n'avons jamais observé de corrélation entre la proximité d'une boîte à un bord donné d'une grosse méssa et le signe de son taux de polarisation linéaire. Les résultats sont complètement décorrélés. Le bord d'une méssa ne semble pas déterminer les propriétés de polarisation de la luminescence des boîtes qui lui sont proches.

Nous effectuons un second test allant dans le même sens afin de conforter nos conclusions. Sur une autre grosse méssa de  $10 \mu\text{m}$  de côté, nous repérons à nouveau deux boîtes proches du milieu d'un des bords (position  $P$ ) et dont le signal est optimisé d'au moins un facteur 2 quand nous passons de  $C$  à  $P$ .

Nous mesurons en  $P$  leur taux de polarisation linéaire et trouvons cette fois  $+38\%$  pour l'une et  $+39\%$  pour l'autre. Nous mesurons ensuite ces taux de polarisation linéaire en nous plaçant à la position  $C$ . A cette position, le signal a largement chuté mais nous permet encore d'effectuer notre mesure et nous trouvons les mêmes taux de polarisation linéaire qu'en  $P$ , à notre erreur expérimentale près qui est de  $\pm 5\%$ . Cela démontre que le fait que le signal passe

par un bord de la méssa n'altère pas, dans la limite de notre résolution, la mesure du taux de polarisation.

L'ensemble de ces observations nous permet d'affirmer que les bords de méssas ne jouent pas un rôle déterminant, par leur réponse optique, sur les propriétés de polarisation que nous observons sur boîte unique.

### 2. Modification de l'émission spontanée au voisinage des bords de méssas

Un dipôle rayonnant placé à la proximité immédiate d'une interface planaire entre deux diélectriques différents peut voir son taux de rayonnement modifié en fonction de son orientation par rapport au plan de l'interface. C'est un effet qui a été observé sur la fluorescence de molécules dans un film fin (20nm) de polymère déposé sur du verre par exemple [102], mais aussi sur d'autres systèmes comme les nanocristaux [103], et dont nous pouvons donner une image incomplète mais simple à l'aide de la théorie des images : la présence de charges ponctuelles fixes proches de la surface planaire "infinie" d'un diélectrique est un problème équivalent du point de vue de l'électromagnétisme classique à la présence de charges de signe opposé situées aux positions symétriques miroir par rapport à la surface [104]. Un dipôle statique dans le vide perpendiculaire à la surface plane d'un diélectrique crée un dipôle image de même sens dans le diélectrique. Par contre si le dipôle dans le vide est parallèle à la surface, le dipôle image est de sens opposé. Les propriétés d'émission d'un dipôle rayonnant proche de la surface peuvent alors se comprendre comme l'interférence des émissions de deux dipôles rayonnants : le réel et le virtuel, ce qui est équivalent à l'interférence entre l'émission du dipôle réel et la réflexion par l'interface de son émission. La théorie des images, juste en électrostatique classique, ne permet en revanche pas de reproduire simplement le détail du comportement électrodynamique d'un dipôle rayonnant proche d'un diélectrique.

Le cas qui nous intéresse ici est celui d'un dipôle rayonnant non pas dans le vide mais dans un environnement diélectrique d'indice optique élevé (le polymère dans [102] ou le GaAs d'indice  $n=3$  pour nous) à l'interface avec l'air ou le vide. Une théorie complète électrodynamique du cas du dipôle rayonnant proche d'une interface entre deux diélectriques a été développée par Lukosz [105, 106] et nous reproduisons en figure 4.1.7 une simulation menée par Brokmann [103] des résultats de cette théorie dans le cas d'une interface air-verre. Nous y voyons que, proche de l'interface, le rayonnement d'un dipôle perpendiculaire à l'interface et situé dans le diélectrique de plus fort indice est inhibé. Le rayonnement d'un dipôle parallèle est par contre peu altéré.

Dans la description de la transition fondamentale d'une boîte quantique que nous avons donnée précédemment, nous avons observé dans la structure fine deux transitions polarisées linéaires X et Y. D'un point de vue classique, ces deux transitions correspondent à deux dipôles oscillants alignés selon X et Y, et qui peuvent donc être parallèles ou perpendiculaires aux interfaces de la méssa. Les effets d'amplification ou d'inhibition de l'émission spontanée dont nous venons

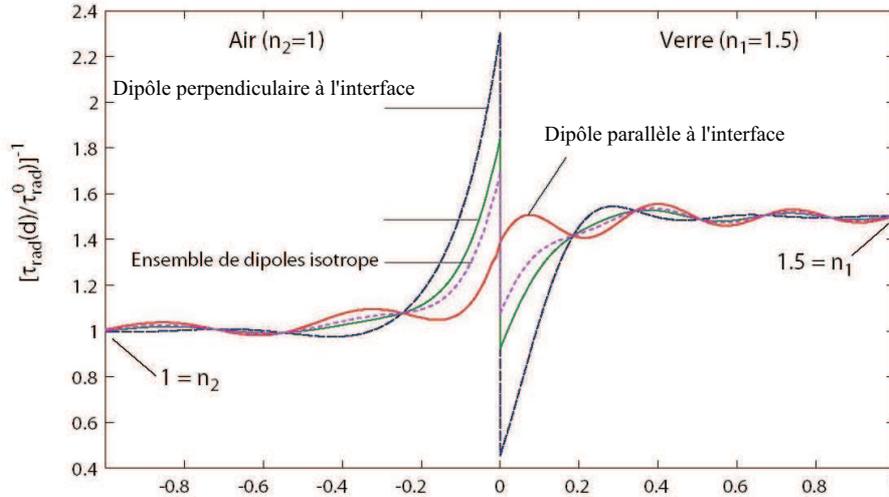


FIG. 4.1.7 – Modification, en fonction de  $\frac{d}{\lambda}$ , du taux d'émission spontanée  $\frac{1}{\tau_{rad}}$  d'un dipôle situé à la distance  $d$  d'une interface plane infinie air-verre, selon son orientation par rapport à l'interface.  $\lambda$  est la longueur d'onde d'émission du dipôle dans le vide.

de parler peuvent apparaître lorsque la distance du dipôle à la surface est bien inférieure à la longueur d'onde de son rayonnement  $\lambda$  divisé par l'indice du milieu  $n$ . Pour nous  $\lambda = 1 \mu m$  et  $n = 3$  environ. Il faut alors typiquement être à quelques dizaines de nm pour pouvoir sentir ces effets. Notons enfin que le miroir en Or présent à 65 nm sous le plan de boîtes dans l'échantillon A ne peut pas modifier de façon différente le rayonnement des deux dipôles alignés selon X et Y puisqu'ils sont tous deux parallèles au miroir : la présence de ce miroir ne peut pas expliquer une anisotropie de polarisation de la luminescence des boîtes sur cet échantillon spécifique.

Cet effet de modification de l'émission spontanée induit par la présence d'un bord de méssa est différent de celui de guidage optique polarisant sur les bords de méssa que nous avons étudié plus haut mais il pourrait conduire aux mêmes effets, à savoir une émission fortement polarisée de la part de certaines de nos boîtes quantiques uniques proches des bords. Si cet effet existe, l'émission d'une boîte quantique est polarisée préférentiellement parallèlement au bord de méssa adjacent.

Pour comprendre si cet effet est déterminant dans nos résultats sur l'émission polarisée de boîtes quantiques dans des mésas, il suffit de s'intéresser au premier test que nous avons mené précédemment : nous avons trouvé deux boîtes distinctes d'axes de polarisation préférentielle orthogonaux ( $R_L = +43\%$  et  $R_L = -28\%$ ) le long d'une même paroi d'une grosse méssa. Or si la présence de la paroi modifiait le taux d'émission spontanée de ces boîtes, cela devrait résulter en une émission préférentiellement polarisée le long de la paroi. Le test effectué

montre donc que ces effets de modification de l'émission spontanée ne sont pas déterminants pour nous. D'ailleurs, comme nous l'avons déjà mentionné, il n'y a aucune corrélation entre les axes de polarisation d'une boîte donnée et la direction de la paroi de méssa la plus proche. De plus, sur certains échantillons, ainsi que nous le détaillerons plus tard, nous n'observons statistiquement que très peu d'anisotropie de polarisation sur les signaux d'émission de boîtes uniques malgré la présence là aussi des méssas.

### 3. Champs de déformations anisotropes le long des bords de méssa

La gravure des méssas par voie chimique parallèlement aux axes  $[X = 1\bar{1}0]$  et  $[Y = 110]$  est susceptible d'entraîner une relaxation des contraintes du matériau à proximité des bords. Les zones proches des bords sont dans ce cas caractérisées par des champs de déformation anisotropes dont les axes propres sont parallèles et perpendiculaires à X et Y. Dans ces zones, la structure cristalline est étirée parallèlement aux bords et, relativement, apparaît comprimée perpendiculairement. La partie atomique des états électroniques en  $\vec{k} = \vec{0}$  n'est alors plus une des fonctions  $u_{n\vec{0}}$  introduites au chapitre I (paragraphe 1.3.2) mais une fonction atomique étirée parallèlement au bord. Cet étirement de la partie atomique des fonctions d'onde des porteurs fixe les propriétés de polarisation de la lumière émise par le système, comme nous l'avons vu au chapitre I (paragraphe 1.4.1) à savoir la luminescence de la couche de mouillage comme la luminescence des boîtes, qui devient polarisée le long du bord. La polarisation de la luminescence induite par la gravure a été observée dans le groupe de Yasuhiko Arakawa [107] et nous avons voulu juger de son importance dans notre contexte expérimental.

Nous avons, à cet égard, travaillé à nouveau sur les méssas de  $10 \mu m$  de côté et avons, en premier lieu, étudié le comportement de la luminescence de la couche de mouillage sur nos échantillons "zone frontière". Nous analysons la polarisation de cette luminescence en traversant de part en part la méssa en son centre le long de l'axe X avec un pas de déplacement de  $1 \mu m$  (voir figure 4.1.8). Nous rapportons ici les résultats obtenus sur trois méssas représentatives :

Sur la méssa 1, l'émission de la couche de mouillage n'est pas polarisée et ce lors de toute la traversée de la méssa. Il ne se passe rien de particulier sur les bords. L'effet polarisant de contrainte anisotrope aux bords semble absent.

Sur la méssa 2, l'émission de la couche de mouillage n'est pas polarisée au centre de la méssa. Par contre, à  $3.5 \mu m$  du bord une polarisation apparaît. Cette polarisation est "majoritairement" Y comme nous l'attendions. Elle augmente ensuite pour atteindre un taux de polarisation linéaire de 15% au bord. C'est l'effet que l'on cherchait à observer, il est bien marqué et présent sur les deux bords.

Sur la méssa 3, l'émission n'est pas polarisée au centre de la méssa. Elle se polarise progressivement lorsque l'on va vers le bord gauche, avec un seuil à

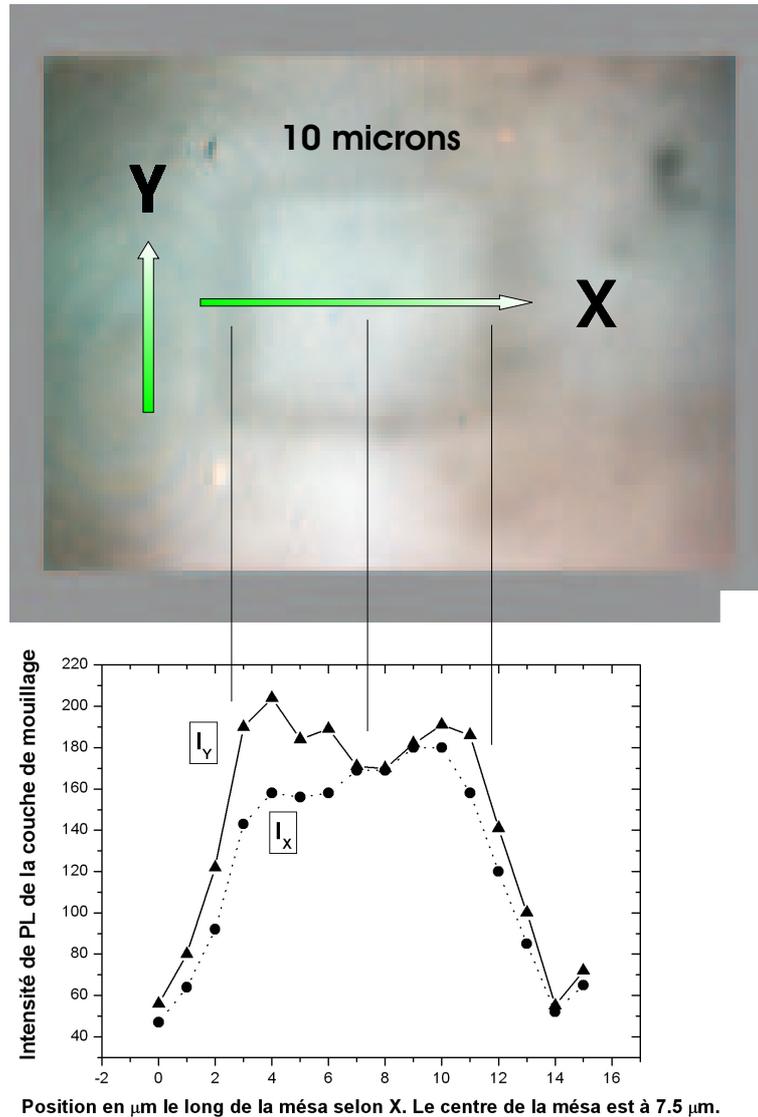


FIG. 4.1.8 – Polarisation de la luminescence de la couche de mouillage sur la méso 3. La méso a une arête de  $10 \mu\text{m}$ , son centre est situé à l'abscisse  $7.5 \mu\text{m}$ .

environ  $4 \mu\text{m}$  du bord. Cet effet est également présent mais moins marqué lorsque l'on va vers le bord droit. Nous montrons en figure 4.1.8 les intensités de luminescence de la couche de mouillage analysées en X et Y lorsque l'on traverse la méso 3 de part en part suivant l'axe X.

Les mésas 1, 2 et 3 révèlent la diversité des situations que l'on peut rencontrer. La gravure sur ces trois structures n'a pas résulté en un même champ de déformations mais en trois situations distinctes. Le cas particulier qui nous intéresse est celui de la méso 2, par exemple, où la luminescence de la couche de mouillage est polarisée en bord de méso. Sur cette méso, nous avons pu réaliser

un test similaire à celui que nous avons rapporté plus haut. Nous avons localisé deux boîtes uniques au milieu d'un bord de méso et avons trouvé des taux de polarisation linéaire  $(I_X - I_Y)/(I_X + I_Y)$  de magnitude plus grande que les 15% de la couche de mouillage. Ceci montre que l'état de contrainte de ces deux boîtes a été principalement défini lors de la croissance et que la gravure ultérieure d'une paroi à proximité ne l'a perturbé que légèrement.

Nous avons mené des tests donnant les mêmes conclusions sur d'autres mésas du type de la méso 2, mais aussi sur des mésas du type des mésas 1 et 3. Finalement, nous concluons que la gravure de mésas n'affecte pas de façon déterminante les propriétés de polarisation des boîtes uniques que nous étudions.

#### Conclusion sur le rôle des mésas

En conclusion, les trois effets que nous avons étudiés ne participent pas de façon déterminante aux propriétés en polarisation de la luminescence de nos boîtes quantiques uniques. Lorsque nous observons un taux de polarisation linéaire de +40% sur une boîte unique, c'est une propriété intrinsèque à la boîte.

### **Anisotropie de polarisation de la luminescence d'une boîte unique**

Nous étudions dans cette section le taux de polarisation linéaire de la luminescence d'une boîte quantique unique en fonction de différents paramètres expérimentaux. Nous commençons avec la boîte 3 de l'échantillon A qui possède un taux de polarisation linéaire de +82% à 10K sous excitation non-résonante dans le GaAs.

La valeur de ce taux de polarisation ne dépend pas de la polarisation du laser, elle ne correspond donc pas à un quelconque effet de mémoire de l'excitation, ce qui est normal étant donnée la nature très non-résonante de l'excitation. La mémoire du laser est complètement perdue lors de la relaxation des porteurs dans la boîte.

#### Etude en puissance

Nous reportons en figure 4.1.9 la dépendance en puissance d'excitation de la luminescence analysée selon X et selon Y. L'intensité du signal analysé suivant X ou Y présente un comportement standard de croissance linéaire puis saturation suivie d'une légère diminution (voir figure 4.1.9 (a)). La largeur de raie, identique pour X et Y, présente un élargissement en puissance révélateur d'effets de fluctuation de l'environnement électrostatique (figure 4.1.9 (b)) comme nous l'avons étudié au chapitre III. Le taux de polarisation de l'émission, lui, ne varie pas sur les deux ordres de grandeur de l'analyse (figure 4.1.9(c)) [108].

#### Etude en température

Nous étudions ensuite la dépendance en température des propriétés de polarisation de l'émission d'une boîte unique. Nous avons mené cette étude sur 5 boîtes

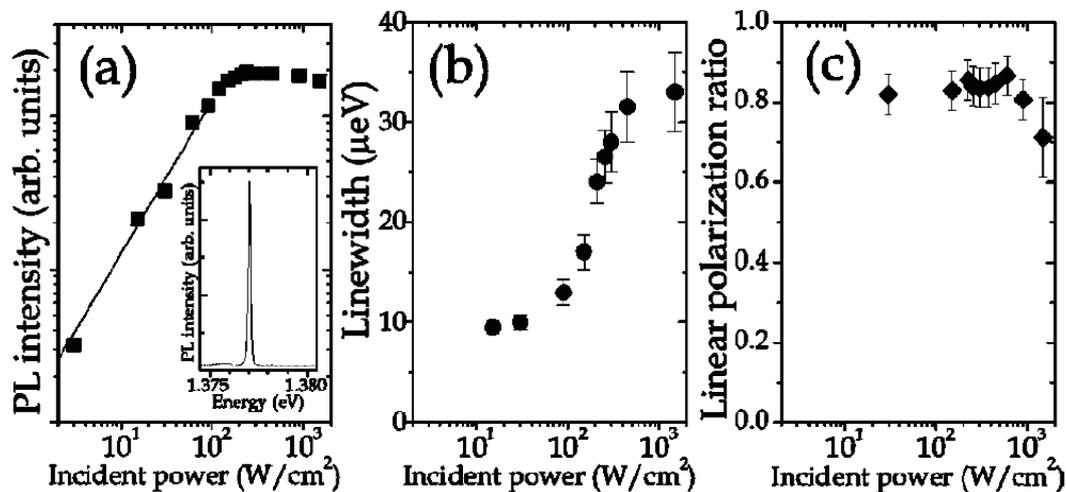


FIG. 4.1.9 – Intensité de photoluminescence (a), largeur de la raie d'émission (b) et taux de polarisation linéaire (c) pour la photoluminescence sous excitation non-résonante, en fonction de la puissance d'excitation, au niveau de la transition fondamentale de la boîte quantique 3 de l'échantillon A.

quantiques : sur la boîte 3 précédente de l'échantillon A, dont l'émission est fortement polarisée à 5 K (+82%) ; sur la boîte 4 de l'échantillon B, dont l'émission est un peu moins polarisée à 5 K (+44%) ; et sur trois boîtes dont l'émission est peu polarisée à 5 K : la boîte 5 de l'échantillon A, la boîte 5bis de l'échantillon D et la boîte 5ter de l'échantillon B.

De telles études en température sont difficiles à mener avec beaucoup de résolution car elles nécessitent de travailler avec de très faibles signaux. Les signaux sur boîte unique chutent lorsqu'on approche 50K : à 60K, nous avons déjà perdu un facteur 3 ou 4 par rapport à 10K et il nous faut intégrer le signal avec la CCD pendant 20 minutes pour obtenir un rapport signal sur bruit confortable (10 typiquement). En pratique à cause des limitations imposées par la stabilité de l'expérience, il n'est pas possible de mesurer avec la même résolution qu'à 10K (à savoir  $\pm 5\%$ ) un taux de polarisation sur boîte unique à 50K. Nous reproduisons en figure 4.1.10 les résultats obtenus lors de ces études. La gamme de température explorée n'est pas la même pour les 5 boîtes car leur émission est plus ou moins intense, ce qui ne permet pas toujours de réaliser une mesure fiable du taux de polarisation linéaire jusqu'à 70K.

Dans la limite de notre résolution expérimentale, les taux de polarisation mesurés, quelle que soit leur valeur à 10K, sont constants en température.

#### Une propriété intrinsèque

Sur la boîte 3, des études de largeur de raie de la transition fondamentale en

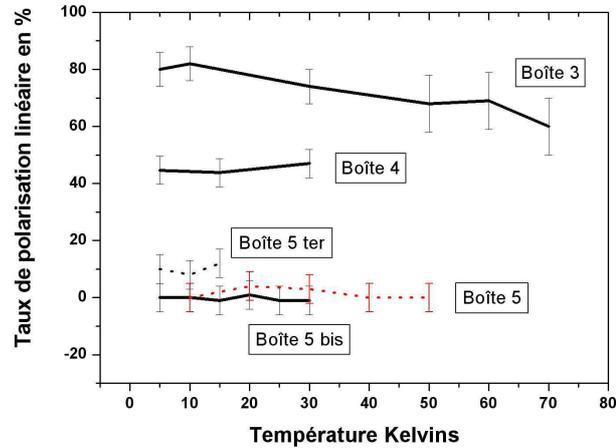


FIG. 4.1.10 – Etude en température du taux de polarisation linéaire du signal de photoluminescence provenant de la transition fondamentale de différentes boîtes quantiques uniques sous excitation non-résonante dans le GaAs. A l'échelle de la précision des mesures, les taux sont constants en fonction de la température.

fonction de la température (reportées au chapitre III figure 3.3.5) nous ont montré un élargissement en fonction de la température entre 5 et 50K. Nous avons vu que cet élargissement était dû à un effet d'activation thermique de l'environnement électrostatique de la boîte. Malgré cela, le taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de la boîte reste constant entre 5 et 50K, démontrant que les propriétés de polarisation de l'émission de la boîte ne sont pas sensibles à cette activation thermique de l'environnement. Par ailleurs le taux de polarisation ne dépend pas non plus de la puissance d'excitation (figure 4.1.9(c)), qui influence également le degré d'activation de l'environnement électrostatique fluctuant. Nous concluons donc que l'anisotropie en polarisation de la luminescence d'une boîte quantique sous excitation non-résonante est bien une propriété intrinsèque à la boîte quantique elle-même et ne dépend pas de son environnement. Son origine est à chercher au sein même de la structure fine de la transition, dans la différence de force d'oscillateur entre les transitions linéaires X et Y.

### Anisotropies de polarisation en zone dense et en zone diluée

L'anisotropie optique en polarisation de la luminescence d'une boîte quantique unique résulte de différentes forces d'oscillateur pour les transitions polarisées linéairement X et Y au sein de la structure fine.

Les résultats d'anisotropie en polarisation de la photoluminescence sur boîte unique détaillés précédemment sont très originaux, car si certains groupes avaient déjà observé de légères anisotropies en spectroscopie de boîtes uniques, c'était

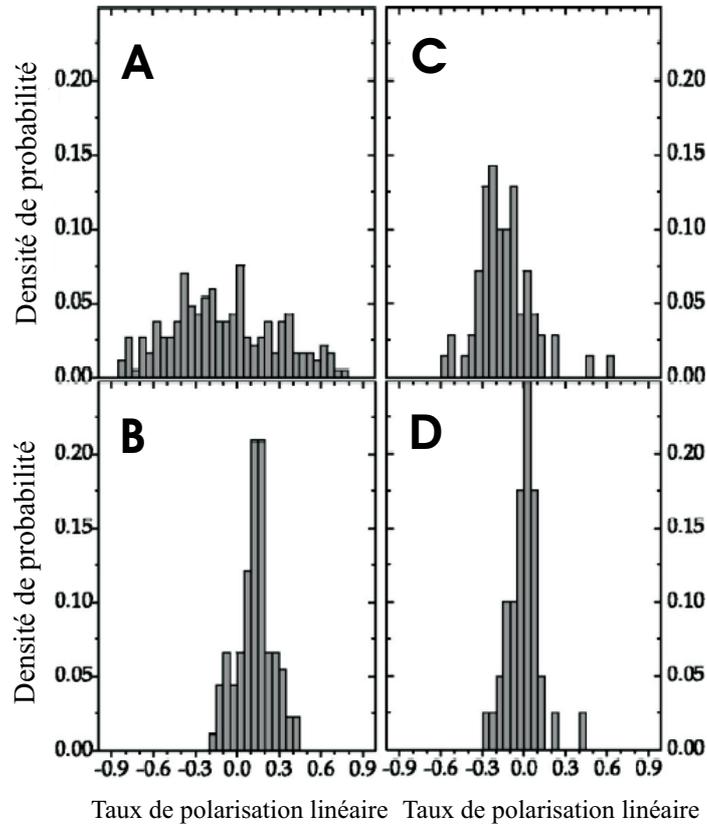


FIG. 4.1.11 – Statistique sur plusieurs centaines de boîtes uniques du taux  $R_L$  de polarisation linéaire de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs sur les 4 échantillons A, B, C et D.

dans des proportions moins grandes et d'ailleurs peu sont ceux qui les avaient discutées en détail [109, 97, 110]. Nous laissant guider par l'idée qu'une telle anisotropie optique était le reflet d'une anisotropie structurale de la nanostructure, nous avons, sur nos 4 échantillons A, B, C et D, réalisé une étude statistique du phénomène d'anisotropie optique sur environ 400 boîtes en zone frontière et en zone dense, où la croissance des îlots se produit de manière très différente.

Nous présentons des résultats statistiques de mesure de taux de polarisation linéaire de la luminescence de boîtes uniques sous excitation non-résonante dans le GaAs obtenus sur nos quatre échantillons provenant de deux laboratoires distincts (CNET de Bagnoux et Materials Department de l'Université de Santa Barbara). L'échantillon A est une zone frontière réalisée au CNET, l'échantillon B une zone dense venant des mêmes bâtis d'épitaxie à la même période. Les échantillons C et D sont respectivement des zones diluée et dense provenant du même wafer dont l'épitaxie a été réalisée à Santa Barbara (voir chapitre II paragraphe 2.2).

Sur l'échantillon A, de type "zone frontière", le taux de polarisation linéaire  $R_L$  sur boîte unique présente un grand écart-type ( $\sigma_{R_L} = 38\%$ ) et une valeur

moyenne  $\langle R_L \rangle = -9\%$ . Il fluctue de boîte à boîte, en signe et en amplitude et peut atteindre 85%, ce qui est le plus fort taux de polarisation jamais reporté à notre connaissance sur boîte quantique unique en photoluminescence non-résonante. Ces fluctuations en signe et amplitude sont présentes sur les quatre échantillons. Sur l'échantillon C, également de zone frontière, la valeur maximale est de 60%, la valeur moyenne est  $\langle R_L \rangle = -15\%$  et l'écart type  $\sigma_{R_L} = 20\%$ .

La valeur maximale observée pour  $R_L$  n'est en revanche que de 30% pour les échantillons B et D de type zone dense. Sur l'échantillon B,  $\langle R_L \rangle = 12\%$  et  $\sigma_{R_L} = 12\%$ . Sur l'échantillon D,  $\langle R_L \rangle = -0.7\%$  et  $\sigma_{R_L} = 11\%$ .

Il se dégage de nos résultats le même comportement pour les couples d'échantillons A-B et C-D (voir figure 4.1.11) : lorsque nous passons d'une zone dense en boîtes à une zone diluée, la distribution statistique des taux de polarisation se rétrécit. Cela signifie d'après notre étude précédente que la différence des forces d'oscillateur X et Y s'accroît dans les zones frontière.

Ce phénomène laisse à penser que les boîtes en zone frontière possèdent des propriétés structurales particulièrement anisotropes.

Par ailleurs dans la zone dense de l'échantillon B, nos résultats montrent que la polarisation moyenne de la luminescence n'est pas nulle ( $\langle R_L \rangle = 12\%$ ). Nous comprenons ici, par une approche statistique à l'échelle de la boîte unique, l'anisotropie de polarisation parfois observée dans des expériences de photoluminescence sur des ensembles de boîtes : elle est due à la somme des anisotropies de polarisation de chacune des boîtes de l'ensemble. La valeur moyenne  $\langle R_L \rangle = 12\%$  sur l'échantillon B est d'ailleurs très proche des 9% que nous avons mesurés en macro-photoluminescence sur l'ensemble de boîtes de l'échantillon E.

### Splitting d'échange sur boîte unique

Nous utilisons la technique du profil dispersif introduite plus haut pour résoudre le splitting d'échange dans nos spectres de photoluminescence sur boîte unique. Cette technique ne fonctionne que lorsque nous disposons de spectres de qualité (raie d'émission bien isolée spectralement, fort rapport signal sur bruit) qui nous permettent d'ajuster finement nos profils aux détails des profils expérimentaux. Seuls quelques spectres remplissent ces conditions, ce qui nous impose naturellement un filtre sur le nombre de boîtes quantiques sur lesquelles nous pouvons étudier le splitting. Par ailleurs, même lorsque les spectres sont propres, si le taux de polarisation linéaire de l'émission sur une boîte donnée est trop élevé, l'ajustement des profils est moins fin et nous ne pouvons conclure dans ces cas qu'à une borne supérieure pour la valeur du splitting, ce qui se produit souvent pour l'échantillon A qui est le siège, en général, de forts taux de polarisation linéaire.

#### Corrélations splitting d'échange-énergie d'émission

Nous reportons en figure 4.1.12 une synthèse de nos résultats d'analyse du

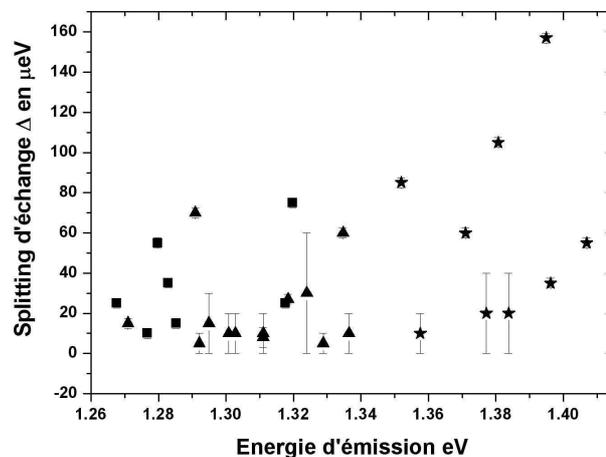


FIG. 4.1.12 – Corrélations (*splitting d'échange*) - (*énergie d'émission*) sur les boîtes uniques de nos quatre échantillons. Les carrés correspondent aux échantillons C et D, les triangles à l'échantillon B et les étoiles à l'échantillon A.

splitting d'échange sur une trentaine de boîtes quantiques des quatre échantillons A,B,C et D. Sur cette figure, il semble que plus l'énergie d'émission est élevée, plus la valeur du splitting  $\Delta$  est grande.

Cette corrélation va dans le sens contraire de ce que nous avons vu précédemment sur l'ensemble de boîtes de l'échantillon E (figure 4.1.1). Les valeurs du splitting sont par contre très similaires, de 7 à 160  $\mu eV$ . Nous n'observons par ailleurs pas de comportement particulier d'un échantillon par rapport à un autre, et notamment rien de différent entre les splittings d'échange sur les échantillons de type zone frontière et les échantillons de type zone 3D. Ceci est peut-être dû au faible nombre de boîtes que nous avons pu analyser (une trentaine), qui ne nous permet pas de distinguer statistiquement les deux types de zone.

#### Corrélations splitting d'échange-anisotropie optique

Nous cherchons maintenant à savoir s'il existe des corrélations plus directes entre les valeurs des splittings d'échange mesurées et les anisotropies optiques que nous avons observées.

Nous traçons en figure 4.1.13 le splitting d'échange en fonction de la valeur absolue du taux de polarisation linéaire pour toutes les boîtes provenant des quatre échantillons A,B,C et D dont nous avons pu résoudre le splitting d'échange et là encore une tendance se dessine : le taux de polarisation linéaire semble être plus élevé lorsque le splitting d'échange est petit.

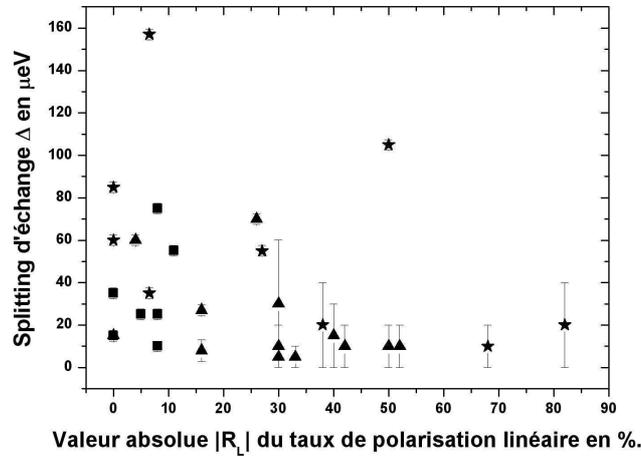


FIG. 4.1.13 – *Splitting d'échange  $\Delta$  en fonction de la valeur absolue du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs. Les carrés correspondent aux échantillons C et D, les triangles à l'échantillon B et les étoiles à l'échantillon A.*

Ce résultat ne concorde pas avec l'idée simple que, si une boîte présente une forte anisotropie structurale, l'anisotropie optique en luminescence doit être grande et le splitting d'échange aussi.

Enfin nous nous intéressons au signe du splitting d'échange, c'est à dire à l'écart  $E_Y - E_X$  entre les positions en énergie des deux transitions polarisées linéairement Y et X, en fonction du taux de polarisation linéaire mesuré et notamment de son signe.

Les résultats que nous obtenons sont contrastés (voir figure 4.1.14). La tendance est que les signes des deux paramètres sur boîte unique sont en général les mêmes. En revanche, ce signe n'est pas le même pour toutes les boîtes, ni même pour toutes les boîtes du même échantillon. L'axe préférentiel de polarisation varie de boîte à boîte sur un même échantillon. Par contre, il est toujours à prendre parmi les deux axes  $X = [1\bar{1}0]$  et  $Y = [110]$ , comme nous l'avons déjà mentionné.

## 4.2 Modélisation de la structure fine

Nous décrivons théoriquement dans cette section la structure fine de la transition fondamentale d'une boîte quantique InAs/GaAs. La présence au sein de la transition d'un doublet dû à l'interaction d'échange entre les porteurs et la différence de force d'oscillateur entre les deux composantes du doublet sont analysées puis comparées à nos résultats sur un ensemble dense de boîtes et sur boîte unique en zone dense et en zone frontière. Nous montrons qu'une description

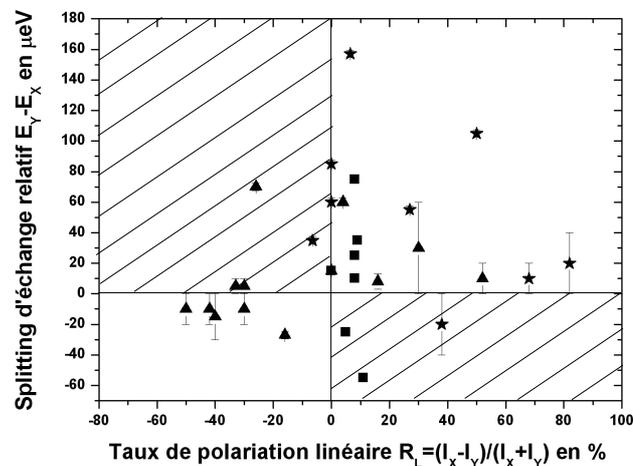


FIG. 4.1.14 – *Splitting d'échange relatif  $E_Y - E_X$ , où  $E_X$  et  $E_Y$  sont les énergies d'émission des transitions polarisées linéairement X et Y au sein de la structure fine, en fonction du taux de polarisation linéaire  $R_L$  de la photoluminescence sous excitation non-résonante dans le GaAs. Les carrés correspondent aux échantillons C et D, les triangles à l'échantillon B et les étoiles à l'échantillon A.*

n'impliquant que des états de valence de type trou lourd est suffisante pour reproduire les résultats obtenus dans des zones denses mais qu'il nous faut par contre inclure la présence de trous légers pour comprendre les propriétés des boîtes en zone frontière. En étudiant pas à pas l'interaction coulombienne entre les porteurs dans une boîte quantique, nous donnons une image simplifiée de l'interaction d'échange électron-trou dans ce système et mettons l'accent sur des termes d'échange habituellement non mentionnés dans la littérature sur le sujet.

### 4.2.1 Structure de bande effective d'un composé III-V

Commençons par rappeler la nature des excitations interbandes au voisinage du gap dans les semiconducteurs massifs III-V GaAs et InAs. Ces excitations correspondent à la promotion d'un électron de la première bande de valence vers un état de la première bande de conduction et c'est leur recombinaison radiative qui donne lieu à la luminescence du matériau. La structure de bandes effective d'un matériau III-V au voisinage du gap se réduit à un ensemble de quatre bandes : une bande d'états de conduction et trois bandes d'états de valence (figure 4.2.1 A)[42, 44]. Sans couplage spin-orbite, ces trois bandes de valence seraient dégénérées mais sa présence ici lève cette dégénérescence : une des trois bandes de valence se trouve située à 0.4 eV (0.41 dans InAs, 0.34 dans GaAs) à plus basse énergie que les deux autres, c'est la bande SO (Split-Off). Les deux autres bandes correspondent aux états de trous lourds et de trous légers et sont dégénérées au

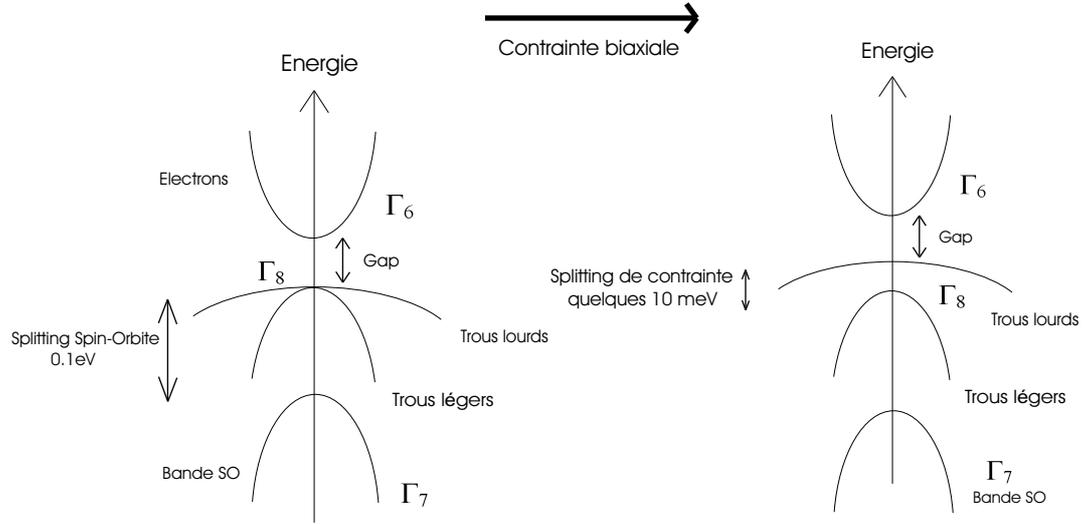


FIG. 4.2.1 – A) Structure de bandes au voisinage du gap d'un cristal semiconducteur III-V à gap direct, tel InAs ou GaAs. B) Effet d'une contrainte biaxiale, les trous légers sont envoyés à plus basse énergie.

centre de la première zone de Brillouin. Si l'on considère de plus le spin 1/2 du porteur, chaque bande devient deux fois dégénérée et notre description comprend huit bandes  $n = 1..8$ .

Au sein de chacune de ces bandes, les états électroniques sont décrits par des fonctions de Bloch de la forme :

$$\psi(\vec{r}) = u_{n\vec{k}}(\vec{r})e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \quad (4.2.1)$$

Les états  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  ( $n = 1..8$ ) forment une base dans laquelle l'opérateur de moment cinétique total  $\vec{J}$  et sa projection  $J_z$  selon  $z$  sont diagonaux. On peut exprimer ces états en fonction des états propres de  $S_z$ , projection du moment cinétique de spin, pour l'électron,  $|\uparrow\rangle$  et  $|\downarrow\rangle$ , et des états atomiques  $|\tilde{S}\rangle, |\tilde{X}\rangle, |\tilde{Y}\rangle$  et  $|\tilde{Z}\rangle$ . Ces derniers états orthonormés, lorsqu'on leur applique les opérations de symétrie laissant invariant le tétraèdre local de la structure zinc-blende, se transforment de la même façon que les fonctions d'onde atomiques  $s, x, y$  et  $z$ .

$ \mathbf{u}_{i\bar{0}}\rangle$	Écriture sur la base $ \tilde{S}\rangle,  \tilde{X}\rangle,  \tilde{Y}\rangle$ et $ \tilde{Z}\rangle$	$ J, m_J\rangle$	Dénomination
$ u_{1\bar{0}}\rangle$	$i \tilde{S}\uparrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	} électrons $\Gamma_6$
$ u_{2\bar{0}}\rangle$	$i \tilde{S}\downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	
$ u_{3\bar{0}}\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( \tilde{X} + i\tilde{Y}\rangle\uparrow)$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	} trous lourds $\Gamma_8$
$ u_{4\bar{0}}\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( \tilde{X} - i\tilde{Y}\rangle\downarrow)$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	
$ u_{5\bar{0}}\rangle$	$-\sqrt{\frac{2}{3}} \tilde{Z}\uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{6}}( \tilde{X} + i\tilde{Y}\rangle\downarrow)$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	} trous légers $\Gamma_8$
$ u_{6\bar{0}}\rangle$	$-\frac{1}{\sqrt{6}}( \tilde{X} - i\tilde{Y}\rangle\uparrow) - \sqrt{\frac{2}{3}} \tilde{Z}\downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	
$ u_{7\bar{0}}\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{3}}( \tilde{X} + i\tilde{Y}\rangle\downarrow) + \frac{1}{\sqrt{3}} \tilde{Z}\uparrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	} trous SO $\Gamma_7$
$ u_{8\bar{0}}\rangle$	$-\frac{1}{\sqrt{3}}( \tilde{X} - i\tilde{Y}\rangle\uparrow) + \frac{1}{\sqrt{3}} \tilde{Z}\downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	

(4.2.2)

Les états atomiques  $u_{1\bar{0}}$  et  $u_{2\bar{0}}$  de la bande de conduction au point  $\Gamma$  ont un moment cinétique orbital atomique  $L = 0$  (symétrie s) et un moment de spin  $S = \frac{1}{2}$ , soit un moment cinétique total  $J = L + S = \frac{1}{2}$ .

Les bandes de valence au point  $\Gamma$  ont des états atomiques de moment cinétique orbital atomique  $L = 1$  (symétrie atomique p). En additionnant ce moment cinétique au spin du porteur  $S = \frac{1}{2}$ , on obtient soit  $J = \frac{1}{2}$  (états de valence correspondant aux trous SO  $\Gamma_7$ ) soit  $J = \frac{3}{2}$  (le quadruplet d'états de valence correspondant aux trous lourds et légers  $\Gamma_8$ ) [111]. Au sein de ce quadruplet, les trous lourds ont une projection de leur moment cinétique selon  $z$   $J_z = \pm\frac{3}{2}$  et les trous légers correspondent à  $J_z = \pm\frac{1}{2}$ .

## 4.2.2 Le rôle des contraintes

Dans un cristal contraint, l'organisation de cette structure de bandes est modifiée. Les états quantiques des porteurs ressentent l'action de la contrainte de manière différente suivant leur symétrie.

On peut caractériser l'état de contrainte du cristal par le tenseur des déformations, linéarisé dans la cas d'une contrainte faible [112] :

$$\underline{\varepsilon} = \varepsilon_{ij}(\vec{R}) = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial(\delta R_i)}{\partial(R_j)} + \frac{\partial(\delta R_j)}{\partial(R_i)} \right) \quad (4.2.3)$$

avec :

$$i, j = x, y, z \quad (4.2.4)$$

où  $\vec{R}$  est le vecteur position dans le cristal non contraint et  $\delta\vec{R}$  est le petit déplacement de ce vecteur sous l'effet de la contrainte. Le tenseur des déformations linéarisé est nommé *strain tensor* dans la littérature anglophone.

Thomas B. Bahder a proposé en 1990 un hamiltonien  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  (voir chapitre I paragraphe 1.3.2) écrit dans la base des états  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  ( $n = 1..8$ ) traduisant l'action des contraintes dans un cristal III-V de structure zinc-blende [113]. Son hamiltonien, qui inclut les effets de contrainte sur les bandes de conduction, est une extension de celui de Bir et Pikus [114] qui ne prend en compte que les effets de contrainte sur les bandes de valence. Il s'écrit :

$ u_{1\vec{0}}\rangle$	$ u_{2\vec{0}}\rangle$	$ u_{3\vec{0}}\rangle$	$ u_{4\vec{0}}\rangle$	$ u_{5\vec{0}}\rangle$	$ u_{6\vec{0}}\rangle$	$ u_{7\vec{0}}\rangle$	$ u_{8\vec{0}}\rangle$
$a'\varepsilon$	0	$t^* + v^*$	$\sqrt{2}(w^* + u)$	0	$-\sqrt{3}(t - v)$	$w - u$	$-\sqrt{2}(t^* + v^*)$
0	$a'\varepsilon$	$\sqrt{2}(w^* + u)$	$t - v$	$-\sqrt{3}(t^* + v^*)$	0	$\sqrt{2}(t - v)$	$w^* + u$
$t + v$	$\sqrt{2}(w + u)$	$-p + q$	0	$s^*$	$r$	$(\frac{3}{2})^{\frac{1}{2}}s$	$\sqrt{2}q$
$\sqrt{2}(w + u)$	$t^* - v^*$	0	$-p + q$	$r^*$	$-s$	$-\sqrt{2}q$	$(\frac{3}{2})^{\frac{1}{2}}s^*$
0	$-\sqrt{3}(t + v)$	$s$	$r$	$-p - q$	0	$\sqrt{2}r$	$\frac{1}{\sqrt{2}}s$
$-\sqrt{3}(t^* - v^*)$	0	$r^*$	$-s^*$	0	$-p - q$	$\frac{1}{\sqrt{2}}s^*$	$-\sqrt{2}r^*$
$w^* - u$	$-\sqrt{2}(t^* - v^*)$	$(\frac{3}{2})^{\frac{1}{2}}s^*$	$-\sqrt{2}q$	$\sqrt{2}r^*$	$\frac{1}{\sqrt{2}}s$	$-a\varepsilon$	0
$-\sqrt{2}(t + v)$	$w + u$	$\sqrt{2}q$	$(\frac{3}{2})^{\frac{1}{2}}s$	$\frac{1}{\sqrt{2}}s^*$	$-\sqrt{2}r$	0	$-a\varepsilon$

(4.2.5)

avec :

$$w = i\frac{1}{\sqrt{3}}b'\varepsilon_{xy}, \quad p = a(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \quad (4.2.6)$$

$$t = \frac{1}{\sqrt{6}}b'(\varepsilon_{xz} + i\varepsilon_{yz}), \quad q = b[\varepsilon_{zz} - \frac{1}{2}(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy})] \quad (4.2.7)$$

$$u = \frac{1}{\sqrt{3}}P_0 \sum_j \varepsilon_{zj}k_j, \quad r = \frac{\sqrt{3}}{2}b(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) - id\varepsilon_{xy} \quad (4.2.8)$$

$$v = \frac{1}{\sqrt{6}}P_0 \sum_j (\varepsilon_{xj} - i\varepsilon_{yj})k_j, \quad s = -d(\varepsilon_{xz} - i\varepsilon_{yz}), \quad \varepsilon = \varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz} \quad (4.2.9)$$

où  $a$ ,  $b$  et  $d$  sont les constantes de Bir et Pikus associées au potentiel de déformation qui décrivent le couplage des bandes de valence au champ de contrainte et  $a'$  et  $b'$  les constantes décrivant le couplage des bandes de conduction au champ de contrainte.

$P_0 = -i\frac{\hbar}{m}\langle\tilde{S}|P_X|\tilde{X}\rangle = -i\frac{\hbar}{m}\langle\tilde{S}|P_Y|\tilde{Y}\rangle = -i\frac{\hbar}{m}\langle\tilde{S}|P_Z|\tilde{Z}\rangle$  est l'élément de matrice de l'opérateur impulsion entre les bandes de conduction et de valence [115].

Dans une couche mince d'InAs épitaxiée sur un substrat de GaAs, la différence de paramètre de maille entre les matériaux (5.59 angströms pour GaAs contre 6.02 pour InAs massif non-contraint) donne lieu à une contrainte biaxiale selon  $z$  : la couche d'InAs est comprimée dans les directions  $x$  et  $y$  et étirée selon  $z$ . Le tenseur des déformations linéarisé dans une telle situation a trois composantes non nulles :  $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$  et  $\varepsilon_{zz}$  et dans ce cas les paramètres  $s$  et  $r$  sont nuls, ce qui donne lieu à un hamiltonien effectif si on se restreint au sous-espace  $\Gamma_8$  :

$u_{3\vec{0}}$	$u_{4\vec{0}}$	$u_{5\vec{0}}$	$u_{6\vec{0}}$
$-a\varepsilon + \frac{b}{2}(3\varepsilon_{zz} - \varepsilon)$	0	0	0
0	$-a\varepsilon + \frac{b}{2}(3\varepsilon_{zz} - \varepsilon)$	0	0
0	0	$-a\varepsilon - \frac{b}{2}(3\varepsilon_{zz} - \varepsilon)$	0
0	0	0	$-a\varepsilon - \frac{b}{2}(3\varepsilon_{zz} - \varepsilon)$

(4.2.10)

Dans le cas d'une couche contrainte à volume constant, on a  $trace(\underline{\varepsilon}) = \varepsilon = 0$  [112] et puisque  $\varepsilon_{zz} > 0$ , la dégénérescence au sein du quadruplet  $\Gamma_8$  est levée : les trous légers se trouvent à plus basse énergie que les trous lourds. Dans InAs (massif) contraint sur GaAs, le splitting lourd-léger est de plusieurs centaines de meV.

Dans le cas des puits quantiques, on ne travaille pas à volume constant mais dans un régime où :

$$\varepsilon_{zz} = -2 \frac{c_{12}}{c_{11}} \varepsilon_{xx} \quad \text{et} \quad \varepsilon_{zz} \simeq \varepsilon_{xx} \quad (4.2.11)$$

et où les effets de confinement viennent se combiner aux effets de contrainte puisque l'énergie de confinement dépend de la masse des porteurs concernés, et n'est partant pas la même pour trous lourds et trous légers. Dans ce cas, le confinement dans le puits rapproche trous lourds et légers et le splitting n'est plus que de l'ordre de la dizaine de meV [116]. Dans un puits InAs dans GaAs de 1.2 monocouche d'épaisseur, Brandt rapporte un splitting de 30 meV [117]) (figure 4.2.1 B).

### 4.2.3 Situation dans une boîte quantique

Dans une boîte quantique, le confinement tridimensionnel des porteurs modifie fortement la description précédente en termes de structure de bandes. Comme nous l'avons vu au chapitre I, le spectre des états électroniques confinés dans la boîte devient discret. Cependant l'approche des fonctions enveloppes, qui décrit ces états confinés comme des produits de fonctions atomiques du matériau massif par des fonctions de l'espace variant plus lentement à l'échelle de la nanostructure

elle-même, nous permet de comprendre leur symétrie atomique avec le langage du matériau massif.

Si nous considérons que le champ de contrainte dans la boîte quantique est similaire au champ de contrainte de la couche de mouillage avant nucléation des boîtes, nous pouvons travailler avec une structure de bandes effective qui ne comprend qu'une bande de conduction (deux fois dégénérée à cause du spin) et une bande de valence : la bande de trous lourds (elle aussi deux fois dégénérée à cause du spin). Nous construisons donc au total les états des porteurs dans la boîte à partir des 4 fonctions atomiques  $u_{1\vec{0}}, u_{2\vec{0}}, u_{3\vec{0}}$  et  $u_{4\vec{0}}$ .

Dans la base  $u_{1\vec{0}}, u_{3\vec{0}}, u_{2\vec{0}}, u_{4\vec{0}}$ . (que nous pouvons aussi écrire  $|iS \uparrow\rangle, |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle, |iS \downarrow\rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$ ), l'hamiltonien  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  pour les états du massif de  $\vec{k}$  non nul s'écrit [42] :

$$H_{\vec{k} \cdot \vec{p}} = \begin{bmatrix} H & 0 \\ 0 & H \end{bmatrix} \quad (4.2.12)$$

où

$$H = \begin{bmatrix} \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} & iP_0 \hbar k_+ \\ -iP_0 \hbar k_- & -\epsilon_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} \end{bmatrix} \quad (4.2.13)$$

dans lequel  $\epsilon_g$  est le gap du matériau,  $m_0$  est la masse de l'électron libre et  $k_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}(k_x \pm ik_y)$ .

La méthode  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  permet alors d'écrire en perturbation :

$$u_{c\vec{k}} = u_{c\vec{0}} - \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k} \cdot \vec{p}_{c\vec{0},v\vec{0}}}{\epsilon_g} u_{v\vec{0}} \quad u_{v(\vec{k})} = u_{v\vec{0}} + \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k} \cdot \vec{p}_{v\vec{0},c\vec{0}}}{\epsilon_g} u_{c\vec{0}} \quad (4.2.14)$$

où  $\vec{p}_{c\vec{0},v\vec{0}} = \langle u_{c\vec{0}} | \vec{p} | u_{v\vec{0}} \rangle$  est l'élément de matrice de l'opérateur  $\vec{p}$  entres les fonctions atomiques de conduction et de valence considérées. L'approche fonction enveloppe appliquée à la boîte fournit alors pour l'état de la bande de conduction et l'état de la bande de valence [42] :

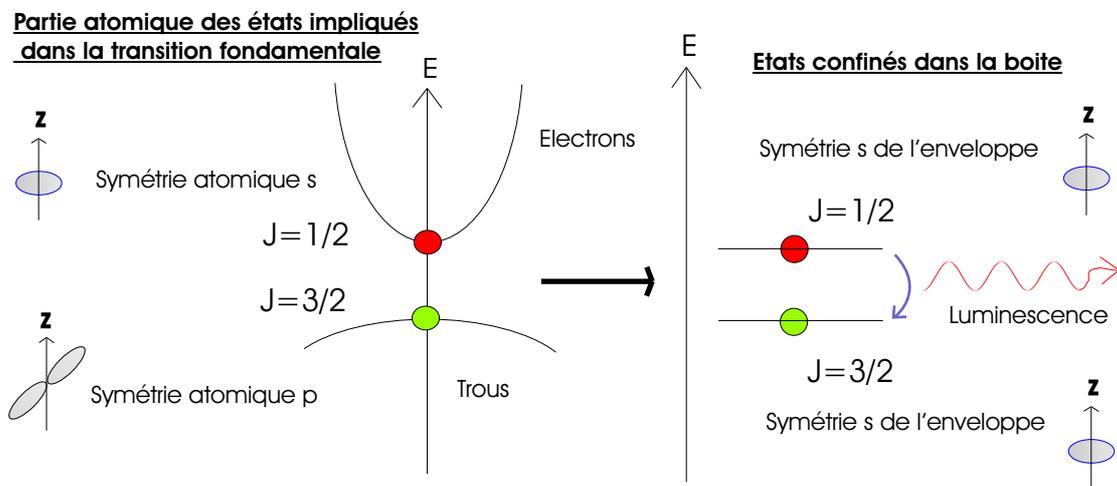
$$\psi_c = \xi_e u_{c\vec{0}} - \frac{i\hbar}{m_0 \epsilon_g} (\vec{p}_{c\vec{0},v\vec{0}} \cdot \vec{\nabla} \xi_e) u_{v\vec{0}} \quad \psi_v = \xi_h u_{v\vec{0}} + \frac{i\hbar}{m_0 \epsilon_g} (\vec{p}_{v\vec{0},c\vec{0}} \cdot \vec{\nabla} \xi_h) u_{c\vec{0}} \quad (4.2.15)$$

où  $\xi_e$  et  $\xi_h$  sont les fonctions enveloppes des premiers états pour l'électron et le trou, enveloppes dont la géométrie est fixée par la géométrie du confinement. Dans la cas d'une boîte modèle conique à base circulaire comme celle présentée au chapitre d'introduction, ces fonctions enveloppes ont la symétrie de révolution de la boîte.

A l'ordre 0 dans le formalisme des fonctions enveloppes, l'état électronique "de conduction" de plus basse énergie à être lié dans la boîte est  $\psi_c = \xi_e u_{c\vec{0}}$ .

Il a un moment cinétique  $J = 1/2$  (orbital atomique plus spin  $\vec{L}^{at} + \vec{S}$ ) donné par la fonction atomique sur laquelle il est construit et il est deux fois dégénéré avec une projection de ce moment selon  $z$  qui vaut  $\pm 1/2$  (electron up ou down), ce qui correspond aux deux cas  $u_{c\vec{0}} = u_{1\vec{0}}$  et  $u_{c\vec{0}} = u_{2\vec{0}}$ . De même, le premier état lié de valence est  $\psi_v = \xi_h u_{v\vec{0}}$  : il a un moment cinétique  $J = 3/2$  (orbital atomique plus spin) et il est également deux fois dégénéré avec  $J_z$  qui vaut  $\pm 3/2$  (trou down ou up)[42].

La recombinaison radiative d'une paire électron-trou construite sur ces deux premiers états donne lieu à la transition fondamentale de la boîte, que nous pouvons étudier via sa luminescence (figure 4.2.2).



Symétrie de la boîte modèle et des fonctions enveloppes des premiers états d'électron et de trou.

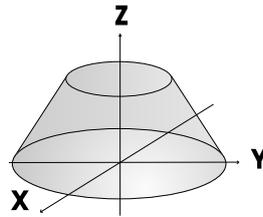


FIG. 4.2.2 – Transition fondamentale de la boîte correspondant à la recombinaison radiative d'un électron dans le premier niveau électronique avec un trou dans le premier état de valence.

Il y a quatre façons de construire une telle paire électron-trou :

$J_z = -1$	$J_z = 1$	$J_z = 2$	$J_z = -2$
électron up $\uparrow$	électron down $\downarrow$	électron up $\uparrow$	électron down $\downarrow$
trou down $\downarrow$	trou up $\uparrow$	trou up $\uparrow$	trou down $\downarrow$
$ -1\rangle$	$ +1\rangle$	$ +2\rangle$	$ -2\rangle$

Ce sont quatre états de paire électron-trou dans la boîte dont les moments cinétiques sont fixés par les parties atomiques.

La transition fondamentale est quatre fois dégénérée. Dans l'approximation du couplage dipolaire électrique, seuls les états  $J_z = \pm 1$  peuvent se coupler à la lumière : ce sont les états brillants. Les états  $J_z = \pm 2$  sont appelés états noirs, ils ne se couplent pas à la lumière. Les états brillants confèrent leur moment cinétique aux photons lors du processus d'émission : les photons émis selon l'axe  $z$  ont donc des polarisations  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , correspondant aux moments cinétiques  $J_z = \pm 1$  des états de paire électron-trou (figure 4.2.3).

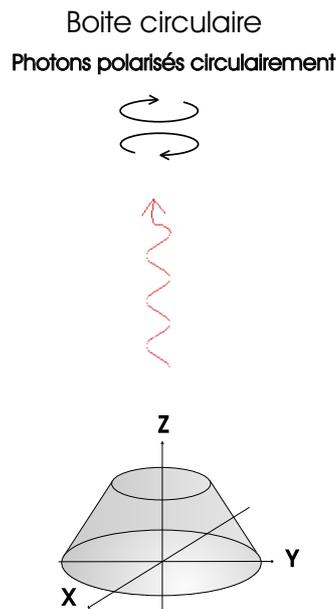


FIG. 4.2.3 – Polarisation des photons émis lors de la recombinaison radiative au niveau de la transition fondamentale interbande d'une boîte quantique modèle, à symétrie circulaire autour de l'axe de croissance.

A ce stade de la description, la transition fondamentale de la boîte quantique est constituée de deux transitions optiques autorisées, dégénérées, polarisées  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  et de deux transitions interdites également à la même énergie.

#### 4.2.4 Interaction coulombienne directe, d'échange et échange effectif électron-trou

Dans une boîte quantique, le confinement des porteurs tend à rendre plus important les effets de leur interaction coulombienne. L'interaction coulombienne importante entre l'électron et le trou impliqués dans la transition fondamentale modifie la description que nous en avons donné précédemment et lui confère une structure fine.

De manière générale, l'interaction coulombienne entre deux particules indiscernables, des électrons de charge  $(-e)$  dans le vide par exemple, se trouvant dans

les états  $\psi$  et  $\phi$ , se compose d'un terme direct  $J_{direct}$  et d'un terme d'échange  $J_{échange}$  donnés par

$$J_{direct} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{|\psi(\vec{r}_1)|^2 |\phi(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.16)$$

et

$$J_{échange} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{\psi^*(\vec{r}_1) \phi^*(\vec{r}_2) \psi(\vec{r}_2) \phi(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.17)$$

Le terme d'échange est une conséquence de l'indiscernabilité des électrons, ou formellement du postulat d'antisymétrisation des fonctions d'onde pour les fermions [118, 119].

Dans notre cas, celui d'une paire électron-trou dans une boîte quantique de semiconducteurs, nous sommes en présence d'un système à  $N$  électrons indiscernables : un dans un état de conduction et  $N - 1$  dans des états de valence. Cette paire électron-trou peut être formée à partir de l'état fondamental  $\phi_0$ , où tous les électrons occupent tous les états de valence, en détruisant un électron dans un état de valence  $v$  et en créant un dans un état de conduction  $c$ . En utilisant le formalisme de la seconde quantification, l'état de cette paire s'écrit :

$$|\phi_{vc}\rangle = c_c^+ c_v |\phi_0\rangle \quad (4.2.18)$$

Nous nous intéressons à l'action de l'interaction coulombienne au sein du système à  $N$  électrons décrit par un état de paire électron-trou et cherchons à savoir dans quelle mesure cette interaction est capable de coupler deux états de paire  $|\phi_{v'c'}\rangle$  et  $|\phi_{vc}\rangle$ . Il nous faut donc calculer les termes suivants :

$$\langle \phi_{vc} | H_c | \phi_{v'c'} \rangle \quad (4.2.19)$$

où  $H_c$  correspond à l'interaction de Coulomb effective électron-électron tenant compte des phénomènes d'écrantage par l'introduction d'une constante diélectrique effective  $\epsilon$  [62] :

$$H_c = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{e^2}{r} \quad (4.2.20)$$

En seconde quantification, l'opérateur  $H_c$ , qui est une somme d'opérateurs à deux particules impliquant chacun les électrons deux à deux, s'écrit [118] :

$$H_c = \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} h_{\gamma\delta\alpha\beta} c_\gamma^+ c_\delta^+ c_\beta c_\alpha \quad (4.2.21)$$

où :

$$h_{\gamma\delta\alpha\beta} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_\gamma^*(\vec{r}_1) \psi_\delta^*(\vec{r}_2) \psi_\alpha(\vec{r}_2) \psi_\beta(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.22)$$

L'élément de matrice qui nous intéresse s'écrit donc à l'aide de ce formalisme :

$$\langle \phi_{vc} | H_c | \phi_{v'c'} \rangle = \langle \phi_0 | c_v^+ c_c | \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} h_{\gamma\delta\alpha\beta} c_\gamma^+ c_\delta^+ c_\beta c_\alpha | c_{c'}^+ c_{v'} | \phi_0 \rangle \quad (4.2.23)$$

pour le calcul duquel on peut distinguer trois cas.

Premier cas :  $v \neq v'$  et  $c \neq c'$ .

Lisons l'élément de matrice précédent de la droite vers la gauche : l'état de départ est  $|\phi_0\rangle$ , auquel on enlève d'abord un électron dans l'état  $v'$  et on ajoute ensuite un électron dans l'état  $c'$ . Puisque nous allons projeter à la fin à gauche sur  $|\phi_0\rangle$ , il faut que la suite des opérations fasse réapparaître un électron dans  $v'$  et fasse disparaître celui qui est arrivé dans  $c'$ , sinon le résultat de la projection est zéro. Or puisque  $v \neq v'$  et  $c \neq c'$ , les opérateurs  $c_v^+$  et  $c_c$  ne peuvent pas réaliser cette opération. C'est donc le groupe d'opérateurs  $c_\gamma^+ c_\delta^+ c_\beta c_\alpha$  qui doit s'en charger et il doit en même temps détruire un électron dans l'état  $v$  puisqu'il va ensuite être recréé par l'action de  $c_v^+$  et créer un électron dans l'état  $c$  puisqu'il sera ensuite détruit par l'action de  $c_c$ .

Finalement, dans le cas  $v \neq v'$  et  $c \neq c'$ , les seuls termes non nuls dans l'élément de matrice précédent sont ceux pour lesquels  $[(\alpha, \beta) = (c', v)$  ou  $(\alpha, \beta) = (v, c')]$  et  $\{(\gamma, \delta) = (c, v')$  ou  $(\gamma, \delta) = (v', c)\}$  et nous obtenons quatre termes :

Les deux termes correspondant à  $[(\alpha, \beta) = (c', v)$  et  $(\gamma, \delta) = (c, v')]$  et  $[(\alpha, \beta) = (v, c')$  et  $(\gamma, \delta) = (v', c)]$  sortent avec un signe + car ils s'écrivent :

$$\langle \phi_0 | c_v^+ c_c | \frac{1}{2} h_{cv'c'v} c_c^+ c_{v'}^+ c_v c_{c'} + \frac{1}{2} h_{v'cv'c'} c_v^+ c_c^+ c_{c'} c_v | c_{c'}^+ c_{v'} | \phi_0 \rangle \quad (4.2.24)$$

ou encore

$$\langle \phi_0 | c_v^+ c_c | \frac{1}{2} h_{cv'c'v} c_c^+ c_{v'}^+ c_v c_{c'} + \frac{1}{2} h_{v'cv'c'} c_v^+ c_c^+ c_{c'} c_v | c_{c'}^+ c_{v'} | \phi_0 \rangle \quad (4.2.25)$$

puisque  $[c_i, c_j^+]_+ = \delta_{ij}$ .

Ils correspondent à des processus d'échange pour les paires d'électrons  $(c', v)$  et  $(c, v')$  : on détruit l'électron dans l'état  $v$  pour le recréer dans l'état  $c$  et parallèlement on détruit l'électron dans l'état  $c'$  pour le recréer dans l'état  $v'$  (voir figure 4.2.4). Les deux termes  $h_{cv'c'v}$  et  $h_{v'cv'c'}$  sont égaux (ils correspondent au même processus) et donnent donc la même contribution à l'élément de matrice.

Les deux termes correspondant à  $[(\alpha, \beta) = (c', v)$  et  $(\gamma, \delta) = (v', c)]$  et  $[(\alpha, \beta) = (v, c')$  et  $(\gamma, \delta) = (c, v')]$  viennent avec un signe - car ils s'écrivent :

$$\langle \phi_0 | c_v^+ c_c | \frac{1}{2} h_{v'c'v} c_v^+ c_{c'}^+ c_v c_{c'} + \frac{1}{2} h_{cv'v'c'} c_v^+ c_{c'}^+ c_{c'} c_v | c_{c'}^+ c_{v'} | \phi_0 \rangle \quad (4.2.26)$$

Ils correspondent à des processus directs entre les paires d'électrons  $(c',v)$  et  $(c,v')$  : on détruit l'électron dans l'état  $v$  pour le recréer dans l'état  $v'$  et parallèlement détruit l'électron dans l'état  $c'$  pour le recréer dans l'état  $c$  (voir figure 4.2.4). Ici encore  $h_{v'cc'v} = h_{cv'vc'}$ .

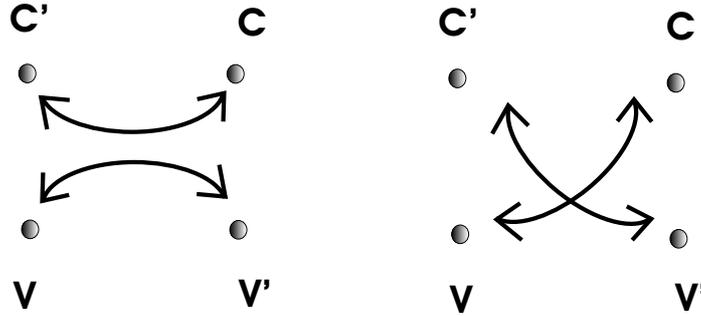


FIG. 4.2.4 – Processus coulombiens entre les paires d'électrons  $(c',v)$  et  $(c,v')$ . A gauche processus direct, à droite processus d'échange.

Dans le cas  $v \neq v'$  et  $c \neq c'$ , on a donc :

$$\langle \phi_{vc} | H_{Coulomb} | \phi_{v'c'} \rangle = h_{cv'c'v} - h_{v'cc'v} \quad (4.2.27)$$

où :

$$h_{cv'c'v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_c^*(\vec{r}_1) \psi_{v'}^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.28)$$

est le terme d'échange qui existerait entre deux paires d'électrons  $(c',v)$  et  $(c,v')$  et :

$$h_{v'cc'v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_{v'}^*(\vec{r}_1) \psi_c^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.29)$$

est le terme de Coulomb direct entre ces deux mêmes paires d'électrons  $(c',v)$  et  $(c,v')$ .

Alors qu'électron et trou ne sont pas des fermions indiscernables, l'interaction coulombienne entre deux états de paire électron-trou comprend un terme direct et un terme d'échange qui s'écrivent à partir des termes directs et d'échange entre 2 électrons dans les états  $\psi_c$  et  $\psi_v$ . C'est en ce sens que l'on parlera plus tard d'interaction d'échange électron-trou.

Deuxième cas :  $v = v'$  et  $c = c'$ .

Dans ce cas, les termes du cas précédent sont toujours présents mais il vient s'en ajouter d'autres car les quatre opérateurs  $c_\gamma^+ c_\delta^+ c_\beta c_\alpha$  dans l'élément de matrice 4.2.23 ne sont plus obligés de détruire l'électron dans  $c'$  pour le recréer dans  $v'$  : les opérateurs  $c_v^+ c_c$  tout à gauche s'en chargent puisque  $v = v'$  et  $c = c'$ . Ce changement par rapport au cas précédent amène l'apparition des termes

$[(\alpha, \beta) = (v_i, v_j)]$  et  $\{(\gamma, \delta) = (v_i, v_j) \text{ ou } (\gamma, \delta) = (v_j, v_i)\}$  où  $v_i \neq v_j$ ,  $v_i \neq v$  et  $v_j \neq v$  qui comprennent tous les processus directs et d'échange concernant deux électrons dans deux états de valence  $v_i$  et  $v_j$  qui n'ont pas été concernés lors de la création de l'exciton. La contribution des termes additionnels est :

$$\sum_{\substack{v_i, v_j \\ i < j \\ v_i \neq v \\ v_j \neq v}} h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_i v_j v_j v_i} \quad (4.2.30)$$

qu'on peut réécrire :

$$\left( \sum_{\substack{v_i, v_j \\ i < j \\ v_i \neq c \\ v_j \neq c}} h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_i v_j v_j v_i} \right) - \left( \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} h_{v_i v v_i v} - h_{v v v_i v} \right) + \left( \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} h_{v_i c v_i c} - h_{c v_i v_i c} \right) \quad (4.2.31)$$

Le premier terme de cette expression comprend tous les processus coulombiens à deux électrons dans l'état fondamental  $\phi_0$ , c'est l'énergie propre coulombienne des  $N$  électrons qui forment cet état. On peut l'écrire :

$$\langle \phi_0 | H_c | \phi_0 \rangle \quad (4.2.32)$$

et on la considérera nulle par convention d'énergie.

Le deuxième terme de l'expression comprend tous les processus coulombiens à deux électrons impliquant l'électron dans l'état de valence  $v$  et un autre électron dans un autre état de valence. Ce terme est ce qu'on pourrait appeler l'énergie coulombienne de l'électron dans l'état  $v$  interagissant avec les  $N - 1$  autres au sein du système à  $N$  électrons dans l'état  $\phi_0$ . On notera cette énergie  $\epsilon_v$ , elle apparaît avec un signe moins dans notre élément de matrice puisqu'il n'y a pas d'électron dans l'état  $v$  dans  $|\phi_{vc}\rangle$ .

Le troisième terme correspond à tous les processus coulombiens entre l'électron dans l'état de conduction et les  $N - 1$  électrons restant dans les états de valence dans l'état  $\phi_{vc}$ . C'est encore une fois une énergie de renormalisation coulombienne, cette fois pour l'électron de conduction, que l'on note  $\epsilon_c$ . Elle apparaît avec un signe +, puisque l'électron de conduction  $c$  est présent dans l'état  $|\phi_{vc}\rangle$ .

Finalement, dans le cas  $v = v'$  et  $c = c'$ , nous retrouvons l'élément de matrice écrit dans [120].

$$\langle \phi_{vc} | H_{Coulomb} | \phi_{vc} \rangle = \epsilon_c - \epsilon_v + h_{cvcv} - h_{vccv} \quad (4.2.33)$$

Troisième cas :  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$  ou  $[v = v' \text{ et } c \neq c']$ .

Notons d'abord que ce cas est peu présent dans la littérature sur les excitons [120, 121, 122]. En effet dans le massif, les états électroniques à une particule à partir desquels on construit les excitons  $|\phi_{vc}\rangle$  sont les états de Bloch. Ces

excitons ont donc un vecteur d'onde  $\vec{k} = \vec{k}_c - \vec{k}_v$  et l'interaction coulombienne est incapable de coupler deux excitons de vecteur d'onde différent,  $|\phi_{vc}\rangle$  et  $|\phi_{v'c}\rangle$  par exemple, à cause de l'invariance par translation [120]. Dans les boîtes quantiques, où l'invariance par translation est brisée, ces termes sont a priori non nuls.

Les deux sous-cas  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$  ou  $[v = v' \text{ et } c \neq c']$  sont un peu similaires. Regardons le sous-cas  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$ . Les termes non nuls qui apparaissent dans l'élément de matrice correspondent aux séquences d'opérateurs suivantes :

$$c_{v'}^+ c_c^+ c_v c_c, \quad c_{v'}^+ c_c^+ c_c c_v, \quad c_c^+ c_{v'}^+ c_c c_v, \quad c_c^+ c_{v'}^+ c_v c_c, \quad (4.2.34)$$

qui donnent toujours les termes :

$$h_{cv'cv} - h_{v'ccv} \quad (4.2.35)$$

mais aussi toutes les séquences d'opérateurs :

$$c_{v'}^+ c_{v_i}^+ c_v c_{v_i}, \quad c_{v'}^+ c_{v_i}^+ c_{v_i} c_v, \quad c_{v_i}^+ c_{v'}^+ c_{v_i} c_v, \quad c_{v_i}^+ c_{v'}^+ c_v c_{v_i}, \quad (4.2.36)$$

pour  $\{v_i \neq c\}$  et  $\{v_i \neq v\}$  et  $\{v_i \neq v'\}$  qui donnent les termes :

$$\sum_{\substack{v_i \neq c \\ v_i \neq v \\ v_i \neq v'}} h_{v_i v' v_i v} - h_{v' v_i v_i v} \quad (4.2.37)$$

Ces derniers termes correspondent aux processus coulombiens à deux électrons impliquant un électron dans l'état  $v$  ou  $v'$  et un électron dans un état de valence  $v_i$  différent de  $v$  et  $v'$ .

Pour le sous-cas  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$ , on a donc au final un élément de matrice qui vaut :

$$\langle \phi_{vc} | H_c | \phi_{v'c} \rangle = h_{cv'cv} - h_{v'ccv} + \sum_{\substack{v_i \neq c \\ v_i \neq v \\ v_i \neq v'}} h_{v_i v' v_i v} - h_{v' v_i v_i v} \quad (4.2.38)$$

De la même façon pour le sous-cas  $[v = v' \text{ et } c \neq c']$ , l'élément de matrice vaut :

$$\langle \phi_{vc} | H_c | \phi_{vc'} \rangle = h_{cv'cv} - h_{vcc'v} + \sum_{\substack{v_i \neq c \\ v_i \neq c' \\ v_i \neq v}} h_{v_i cv_i c'} - h_{cv_i v_i c'} \quad (4.2.39)$$

Nous voyons que dans les boîtes contrairement au cas du massif, pour les cas  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$  ou  $[v = v' \text{ et } c \neq c']$ , l'interaction coulombienne électron-trou ne se réduit pas strictement à des termes directs et d'échange entre les états de paire

électronique  $(c,v')$   $(c,v)$  ou  $(c,v)$   $(c',v)$  impliquant l'état de conduction occupé et l'état de valence vidé lors de la création de l'exciton. Il existe en plus des termes impliquant tous les autres états de valence occupés par des électrons.

Dans la littérature sur l'interaction d'échange dans les boîtes quantiques, ces termes sont laissés de côté car le calcul du terme d'échange électron-trou est fait à partir d'une base d'états électroniques volontairement tronquée. Nous pouvons ici nous demander quelle est l'influence de ces termes dans nos études sur les boîtes quantiques.

Dans ce paragraphe, nous cherchons à comprendre la structure fine de la transition fondamentale d'une boîte, qui implique le premier niveau électronique de "conduction" dans la boîte et le premier niveau de trou. Le recouvrement entre les fonctions d'onde de ces deux états est important puisqu'ils ont, à l'ordre 0, la même fonction enveloppe de symétrie  $s$  (voir équation 4.2.15). Par contre ces deux fonctions d'onde étant très localisées dans la boîte quantique, elles ont un recouvrement faible avec les fonctions d'onde des états électroniques de valence de la couche de mouillage ou de la matrice GaAs : l'interaction coulombienne entre un porteur impliqué dans la transition fondamentale et un électron de valence de l'environnement de la boîte (i.e. de la couche de mouillage ou de la matrice GaAs) est a priori faible.

De plus les autres états liés de porteurs dans la boîte, c'est à dire ceux qui ne sont pas impliqués dans la transition fondamentale, ont des enveloppes de symétrie  $p$ ,  $d$ , ... (enveloppe  $p$  pour le second état de trou,  $d$  pour le troisième...). Le recouvrement entre les fonctions d'onde des porteurs dans ces états et les fonctions d'onde d'enveloppe  $s$  des porteurs impliqués dans la transition fondamentale est donc plus faible (il est même idéalement nul dans cette description simple).

C'est pourquoi pour décrire la structure fine de la transition fondamentale, nous ne considérerons que l'interaction coulombienne entre les deux porteurs impliqués dans la transition fondamentale. Les termes coulombiens supplémentaires qui sont apparus dans les cas  $[v \neq v' \text{ et } c = c']$  ou  $[v = v' \text{ et } c \neq c']$  seront négligés en première approche. Par contre nous les garderons en mémoire comme une source possible de perturbation de la structure fine que nous étudierons au chapitre suivant.

### Conclusion

Finalement, après avoir négligé ces termes, l'effet de l'interaction coulombienne dans les trois cas que nous avons passés en revue se traduit par une interaction effective électron-trou qui s'écrit comme l'interaction d'un électron dans le premier état de "conduction" de la boîte avec un électron fictif qui serait resté dans le dernier état de valence. De façon compacte, nous écrivons pour les trois cas :

$$\langle \phi_{vc} | H_c | \phi_{v'c'} \rangle = \delta_{v,v'} \delta_{c,c'} (\epsilon_c - \epsilon_v) + h_{cv'c'v} - h_{vcc'v} \quad (4.2.40)$$

où

$$h_{cv'c'v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_c^*(\vec{r}_1) \psi_{v'}^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.41)$$

est un terme d'échange entre deux paires d'électrons et

$$h_{v'cc'v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_{v'}^*(\vec{r}_1) \psi_c^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.42)$$

est un terme direct entre deux paires d'électrons.

## 4.2.5 Origine de la structure fine

### Effet de l'interaction coulombienne sur le spin

La description que nous avons donnée précédemment de la transition fondamentale fait appel pour l'instant à quatre états pour les porteurs dans la boîte : deux électroniques de "conduction" et deux de trou lourd. Nous avons vu à la section précédente que pour comprendre l'effet de l'interaction d'échange sur cette transition, il suffit de s'intéresser à son action au sein des quatre états électroniques correspondants :

$$i|\tilde{S} \downarrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle, \quad i|\tilde{S} \uparrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle, \quad \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} + i\tilde{Y}) \uparrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle, \quad \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} - i\tilde{Y}) \downarrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle, \quad (4.2.43)$$

L'interaction coulombienne ne peut pas transformer un électron de spin donné en un électron de spin différent puisqu'elle ne voit pas ce degré interne de liberté qu'est le spin.

Processus directs :

Dans le processus direct schématisé dans la partie gauche de la figure 4.2.4, les électrons dans les états  $c$  et  $c'$  doivent donc avoir le même spin et il en va de même pour les électrons dans les états  $v$  et  $v'$ .

Puisque les états  $c$  et  $c'$  sont ici à prendre parmi les 2 états  $i|\tilde{S} \downarrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$  et  $i|\tilde{S} \uparrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$ , qui sont de spins opposés,  $c$  et  $c'$  doivent être un seul et même état dans le processus direct, à savoir  $i|\tilde{S} \downarrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$  ou  $i|\tilde{S} \uparrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$ . Pour les mêmes raisons, dans un processus direct,  $v$  et  $v'$  sont un seul et même état, à savoir  $\frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} + i\tilde{Y}) \uparrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle$  ou  $\frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} - i\tilde{Y}) \downarrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle$ .

Finalement, dans le processus direct, nous avons forcément ( $c=c'$ ) et ( $v=v'$ ). Cela signifie que ce processus n'est capable de coupler un exciton  $|\phi_{vc}\rangle$  qu'avec lui-même.

Dans la base d'états de paire électron-trou  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$ , les processus coulombiens directs s'écrivent donc sous forme diagonale :

$$H_{direct} = \begin{bmatrix} -a & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -c & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -d \end{bmatrix} \quad (4.2.44)$$

avec

$$a = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int_{R^3} \frac{|u_{4\bar{0}}(\vec{r}_2)|^2 |\xi_v(\vec{r}_2)|^2 |u_{2\bar{0}}(\vec{r}_1)|^2 |\xi_c(\vec{r}_1)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.45)$$

$$b = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int_{R^3} \frac{|u_{3\bar{0}}(\vec{r}_2)|^2 |\xi_v(\vec{r}_2)|^2 |u_{1\bar{0}}(\vec{r}_1)|^2 |\xi_c(\vec{r}_1)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.46)$$

$$c = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int_{R^3} \frac{|u_{4\bar{0}}(\vec{r}_2)|^2 |\xi_v(\vec{r}_2)|^2 |u_{1\bar{0}}(\vec{r}_1)|^2 |\xi_c(\vec{r}_1)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.47)$$

$$d = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int_{R^3} \frac{|u_{3\bar{0}}(\vec{r}_2)|^2 |\xi_v(\vec{r}_2)|^2 |u_{2\bar{0}}(\vec{r}_1)|^2 |\xi_c(\vec{r}_1)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.48)$$

Or la symétrie des 4 fonctions atomiques  $\{u_{i\bar{0}}\}_{i=1..4}$  impose  $a = b = c = d = \gamma$  et finalement :

$$H_{direct} = -\gamma \quad (4.2.49)$$

L'interaction directe de Coulomb a pour effet de lier la paire électron-trou impliquée dans la transition fondamentale (effet excitonique) et abaisse son énergie de recombinaison radiative de quelques dizaines de meV [64, 52].

Processus d'échange :

Le fait que l'interaction coulombienne ne voit pas le degré interne de spin des porteurs implique que dans le processus d'échange représenté dans la partie droite de la figure 4.2.4, les électrons dans les états  $c'$  et  $v'$  doivent avoir le même spin ainsi que les électrons dans les états  $c$  et  $v$ . Si  $c' = i|\tilde{S} \downarrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$  alors  $v' = \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} - i\tilde{Y}) \downarrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle$  et si  $c' = i|\tilde{S} \uparrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle$  alors  $v' = \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} + i\tilde{Y}) \uparrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle$ .

Au sein des quatre états électroniques écrits (équation 4.2.43), cela signifie que les processus d'échange d'origine coulombienne ne peuvent opérer que sur deux couples d'états électroniques, à savoir :

$$[ i|\tilde{S} \downarrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} - i\tilde{Y}) \downarrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle ] \quad \text{et} \quad [ i|\tilde{S} \uparrow\rangle \otimes |\xi_c\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}}|(\tilde{X} + i\tilde{Y}) \uparrow\rangle \otimes |\xi_v\rangle ] \quad (4.2.50)$$

Le premier de ces couples correspond à l'exciton brillant  $|+1\rangle$ , le second correspond à  $|-1\rangle$  (voir figure 4.2.5).

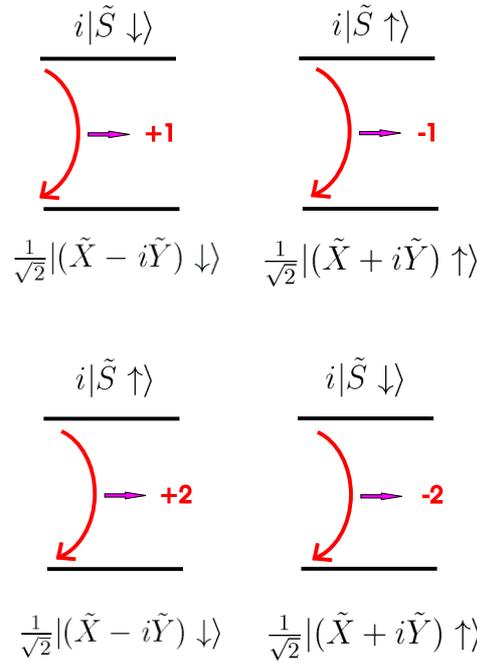


FIG. 4.2.5 – La transition fondamentale avec sa dégénérescence d'ordre 4 représentée comme une transition entre états électroniques. Les deux transitions du haut sont optiquement autorisées et correspondent aux excitons brillants de moment  $+1$  et  $-1$ . Les deux autres sont optiquement interdites et correspondent aux excitons noirs  $+2$  et  $-2$ .

Nous voyons que les seuls excitons  $|\phi_{vc}\rangle$  à pouvoir être couplés par le biais de l'interaction d'échange sont les excitons brillants. Les excitons noirs ne sont pas affectés : dans la base d'états de paire électron-trou  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$ , nous pouvons écrire l'interaction d'échange sous la forme :

$$H_{\text{échange}} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \delta & \Delta & 0 & 0 \\ \Delta & \delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4.2.51)$$

La notation  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$  fait référence aux valeurs propres de  $J_z^{\text{at}}$  agissant sur la partie atomique seulement des états électroniques (projection du

moment cinétique orbital atomique plus le moment cinétique de spin  $\vec{L}^{at} + \vec{S}$ ) car les règles de sélection sont définies par les éléments de matrice écrits au paragraphe 1.4.1 du chapitre I.

Comme l'interaction coulombienne  $H_c = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{e^2}{r}$  commute avec  $\vec{J}$  et  $J_z$ , elle ne peut pas coupler des états de  $J$ ,  $J_z$  différents mais cette fois c'est le moment cinétique total de l'état complet (partie atomique+partie enveloppe) qu'il faut considérer où la partie enveloppe donne une contribution  $\vec{L}^{env}$  au moment cinétique orbital :

$$\vec{J} = \vec{L}^{env} + \vec{L}^{at} + \vec{S} = \vec{L}^{env} + \vec{J}^{at} \quad (4.2.52)$$

Cette distinction entre la partie atomique et la partie enveloppe des états électroniques invite à séparer l'interaction d'échange que nous étudions en sa partie courte portée, qui agit à l'échelle des fonctions atomiques, et sa partie longue portée, qui agit à l'échelle des fonctions enveloppes.

### Interaction d'échange courte portée

L'interaction d'échange courte portée est par définition celle qui agit à l'échelle de la cellule élémentaire, elle ne voit donc que la partie atomique des fonctions d'onde des porteurs dans la boîte.

L'interaction de Coulomb étant également invariante par rotation à l'échelle de la cellule élémentaire, elle commute avec l'opérateur de moment cinétique  $\vec{L}^{at}$  pour la paire électron-trou et puisqu'elle ne voit pas le degré de liberté de spin, elle commute aussi avec  $\vec{J}^{at} = \vec{L}^{at} + \vec{S}$ . Cela implique que les processus d'échange d'origine coulombienne sont incapables à l'échelle de la cellule élémentaire de coupler deux paires électron-trou de moment cinétique différent. Dans la base d'états de paire  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$  que nous avons introduite plus tôt, nous pouvons écrire l'action de l'interaction d'échange courte portée  $H_{cp}$  :

$$H_{cp} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \delta_{cp} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \delta_{cp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4.2.53)$$

$$\langle +1|H_{cp}|+1\rangle = \langle -1|H_{cp}|-1\rangle = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{u_{1\vec{0}}^*(\vec{r}_1) u_{4\vec{0}}^*(\vec{r}_2) u_{1\vec{0}}(\vec{r}_2) u_{4\vec{0}}(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (4.2.54)$$

qui n'agit que sur les parties atomiques des états.

Il y a donc une levée de dégénérescence entre états noirs et états brillants (voir figure 4.2.8). Dans les boîtes InAs/GaAs, les états noirs se trouvent environ à  $400 \mu eV$  sous les états brillants [94] et  $670 \mu eV$  dans des boîtes II-VI [84].

### Interaction d'échange longue portée

L'interaction d'échange longue portée voit, elle, les fonctions d'onde des porteurs à l'échelle de leur enveloppe.

Dans le cas d'une boîte quantique de symétrie  $D_{2v}$  invariante par rotation autour de  $z$ , les premiers états liés pour l'électron et le trou dans la boîte sont :

$$\psi_c = \xi_e u_{c\vec{0}} - \frac{i\hbar}{m_0\epsilon_g} (\vec{p}_{c\vec{0},v\vec{0}} \cdot \vec{\nabla} \xi_e) u_{v\vec{0}} \quad \psi_v = \xi_h u_{v\vec{0}} + \frac{i\hbar}{m_0\epsilon_g} (\vec{p}_{v\vec{0},c\vec{0}} \cdot \vec{\nabla} \xi_h) u_{c\vec{0}} \quad (4.2.55)$$

pour lesquels  $\vec{L}^{env} = \vec{0}$  puisque  $\xi_e$  et  $\xi_h$  ont la symétrie  $s$ . Le moment cinétique total  $\vec{J}$  des états de paire électron-trou est alors déterminé par les parties atomiques (c'est à dire par  $\vec{L}^{at} + \vec{S}$ ) et l'interaction d'échange longue portée ne peut pas coupler les états  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  à cause de son invariance par rotation.

Dans le cas d'une boîte quantique de symétrie plus réduite en revanche, par exemple une boîte quantique allongée elliptiquement selon un axe, les fonctions d'onde des porteurs dans la boîte sont toujours données par l'équation 4.2.55 mais à présent  $\xi_e$  et  $\xi_h$  possèdent un moment cinétique enveloppe non nul à cause de l'anisotropie. Dans ce cas, nous n'avons plus  $\vec{L}^{env} \neq \vec{0}$  pour les états  $\psi_c$  et  $\psi_v$ .

Dans ce cas d'une boîte à symétrie réduite, l'interaction d'échange longue portée peut coupler les deux états de paire électron-trou  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  car leur partie enveloppe, si tant est qu'elle possède une composante  $L_z^{env} = \pm 2$  au minimum (symétrie  $d$  ou plus), peut maintenant compenser la variation de moment cinétique  $\Delta J_z^{at} = 2$  qui survient au niveau atomique lorsque l'on passe de l'état  $|+1\rangle$  à l'état  $|-1\rangle$ . La façon la plus facile de conférer cette composante  $L_z^{env} = \pm 2$  à des enveloppes est de les étirer dans une direction du plan  $(x,y)$  pour transformer leur base circulaire en ellipse.

Finalement, l'action de l'interaction d'échange longue portée dans une boîte à base circulaire ou elliptique s'écrit dans la base  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$  :

$$H_{lp} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \delta_{lp} & \Delta & 0 & 0 \\ \Delta & \delta_{lp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4.2.56)$$

où  $\Delta$  est appelé le splitting d'échange longue portée anisotrope : il est nul théoriquement dans une boîte modèle à base circulaire et devient non nul dans une boîte à symétrie plus réduite possédant par exemple une base elliptique. Les expériences dans les boîtes InAs/GaAs réelles montrent que  $\Delta$  est de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$  [85, 93, 94].

### Anisotropie du potentiel de confinement

Il faut donc de manière générale, en plus du mélange  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , une rupture de la symétrie  $s$  de l'enveloppe pour faire rentrer en jeu l'interaction d'échange longue portée entre les deux états brillants  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ . Une symétrie réduite au niveau de l'enveloppe apparaît si le potentiel de confinement est anisotrope, ce qui est le cas lorsque la base de la boîte est légèrement elliptique comme nous l'avons vu (voir figure 4.2.8), mais aussi lorsque la composition ou le champ de déformation au sein de la boîte sont eux-mêmes anisotropes.

Des images synchrotron et STM ont mis en évidence un allongement fréquent des boîtes quantiques selon la direction cristallographique  $[1\bar{1}0]$  (voir figure 4.2.6), assurant déjà que la symétrie spatiale des boîtes quantiques uniques est souvent brisée.

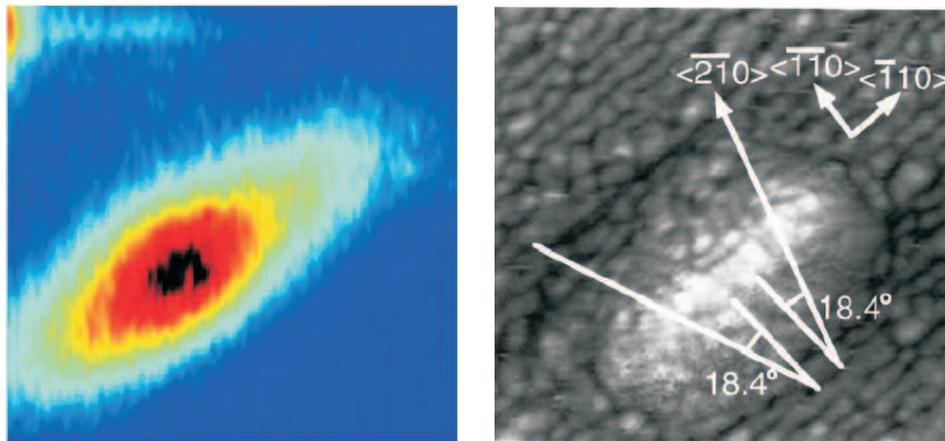


FIG. 4.2.6 – A gauche : image d'une boîte unique InAs/GaAs par le synchrotron d'Hambourg. A droite : image STM d'une boîte unique [91].

Par ailleurs, même dans une boîte à forte symétrie géométrique, des effets de contraintes sont responsables d'asymétries dans le potentiel de confinement. La présence de champs piezoélectriques locaux induits par les composantes de cisaillement du champ de déformation au sein de la boîte confère aux enveloppes des fonctions d'onde des trous des symétries plus faibles que la symétrie  $D_{2v}$ , nous en avons vu un exemple dans la figure 1.3.4 du chapitre d'introduction [45, 46, 47]. Migliorato s'est intéressé à ce phénomène en mettant l'accent sur le rôle d'une composition non-uniforme au sein de la boîte [123]. Il a montré que, dans la boîte, des gradients de concentration d'InAs par rapport à GaAs donnent naissance à une densité de charge piezo-électrique plus importante que dans le cas d'une boîte d'InAs pur. De tels gradients à l'intérieur de la boîte (i.e. une composition non-uniforme de la boîte) permettent aux termes de contrainte de cisaillement, qui apparaissent aux interfaces InAs/GaAs, de pénétrer jusqu'au sein de la boîte quantique au lieu de rester localisés sur ses bords à l'interface

avec la matrice GaAs environnante, comme dans le cas d'une boîte d'InAs pur [124]. Cela donne lieu à un effet de déformation important sur les enveloppes des fonctions d'onde des deux types de porteurs confinés dans la boîte, contrairement à ce que prévoyait Stier dans le cas d'une boîte à composition uniforme en InAs [125], où seules les fonctions d'onde des trous étaient déformées légèrement et de façon très localisée sur les bords de la boîte.

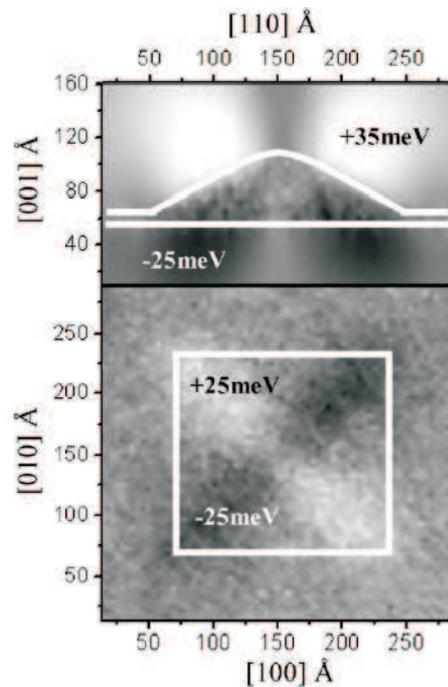


FIG. 4.2.7 – *Potentiel piezo-électrique calculé pour une boîte à base carrée de composition non-uniforme [124]. Les zones claires (sombres) indiquent les valeurs positives (négatives).*

Nous reproduisons en figure 4.2.7 le potentiel piezoélectrique que calcule Migliorato pour l'électron dans une boîte quantique modèle à base carrée, l'asymétrie du potentiel de confinement induit par les contraintes et les effets de composition y apparaît nettement. Nous avons vu au chapitre I (figure 1.3.4) que cette asymétrie est moins marquée dans l'approximation d'une boîte à base circulaire que carrée, mais le calcul de Migliorato permet de se faire une image du rôle des contraintes et des effets de composition sur l'anisotropie du potentiel de confinement dans une boîte. Les axes principaux de cette anisotropie sont les axes cristallographiques  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$ .

### Structure fine de la transition fondamentale impliquant l'exciton lourd

Finalement que ce soit à cause d'une élongation géométrique de la boîte dans la direction  $[1\bar{1}0]$  ou à cause d'effets de contrainte et de composition, il semble plus crédible de considérer une boîte présentant un potentiel de confinement à symétrie réduite possédant des axes principaux X et Y qui sont les directions cristallographiques  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$ . L'interaction d'échange anisotrope à longue portée entre l'électron et le trou entre donc souvent en jeu, avec ces axes de symétrie caractéristiques.

Dans ce cas les deux états brillants  $|+1\rangle$  ou  $|-1\rangle$  sont couplés et leur dégénérescence est levée : les deux nouveaux états brillants stationnaires sont :

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \rightarrow \textit{photons polarisés} \quad \frac{1}{\sqrt{2}}(\sigma^+ + \sigma^-) = X \quad (4.2.57)$$

et

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \rightarrow \textit{photons polarisés} \quad \frac{1}{\sqrt{2}}(\sigma^+ - \sigma^-) = Y \quad (4.2.58)$$

Ils sont séparés en énergie du splitting  $\Delta$  et émettent des photons polarisés linéairement suivant les axes propres X et Y du potentiel de confinement (voir schéma des levées de dégénérescence figure 4.2.8), qui sont les axes cristallographique  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$  de l'échantillon.

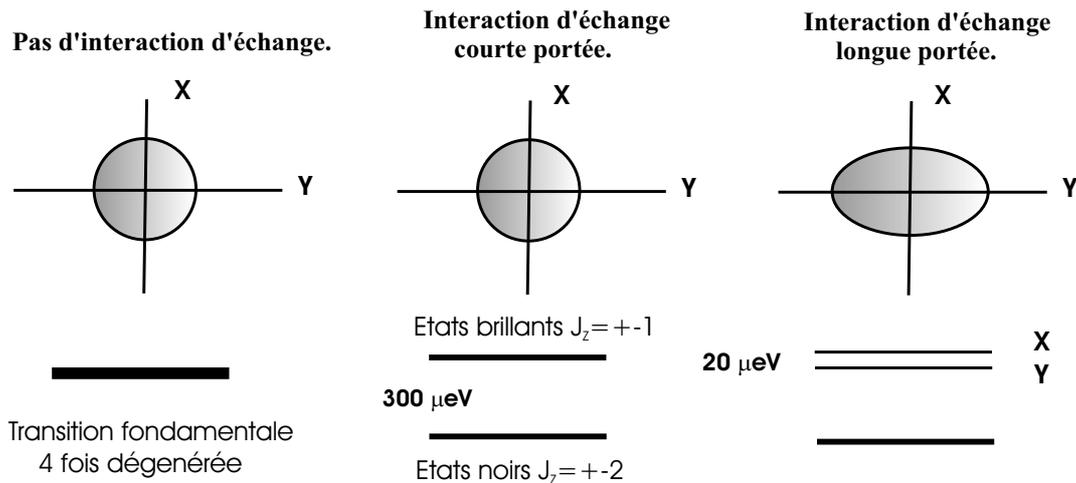


FIG. 4.2.8 – Schéma des levées de dégénérescence au sein de la transition fondamentale sous l'action de l'interaction d'échange électron-trou.

### Interaction d'échange dans le cadre de l'approche pseudo-potentiel

Enfin, même dans le cas d'une boîte de composition uniforme et d'enveloppe de symétrie  $s$ , la symétrie  $C_{2v}$  du cristal zinc-blende sous-jacent demeure : le système boîte quantique InAs/GaAs n'a pas la symétrie  $D_{2v}$ . Cela a été mis clairement en lumière par le travail du groupe d'Alex Zunger [126, 127], dont l'approche pseudo-potentiel inclut naturellement les symétries du cristal ainsi que l'interaction d'échange, sans faire de distinction entre son action à longue portée et à courte portée sur la partie atomique.

En utilisant les techniques du pseudo-potentiel, Bester a ainsi montré que la transition fondamentale d'une boîte quantique, même pour un potentiel de confinement de symétrie  $D_{2v}$ , possède toujours une structure fine constituée de deux raies de même intensité polarisées linéairement selon X et Y [126]. Cela est dû à la symétrie  $C_{2v}$  du cristal sous-jacent, qui se traduit par le fait que la constante diélectrique  $\varepsilon(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  dans la cellule élémentaire n'est pas invariante par rotation. L'allure qualitative de la structure fine présentée en figure 4.2.9 reste valable même dans ce cas. Pour une boîte circulaire, le splitting d'échange entre ces deux raies est de l'ordre de  $4 \mu\text{eV}$ , que nous pouvons prendre comme valeur de référence de l'interaction d'échange pour une boîte idéalement symétrique.

Notre description aboutit donc à ce stade à l'existence d'une structure fine au sein de la transition fondamentale : elle est constituée de deux transitions polarisées linéairement selon  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$  et séparées par un splitting d'échange longue portée d'une magnitude de quelques  $10 \mu\text{eV}$  (voir figure 4.2.9).

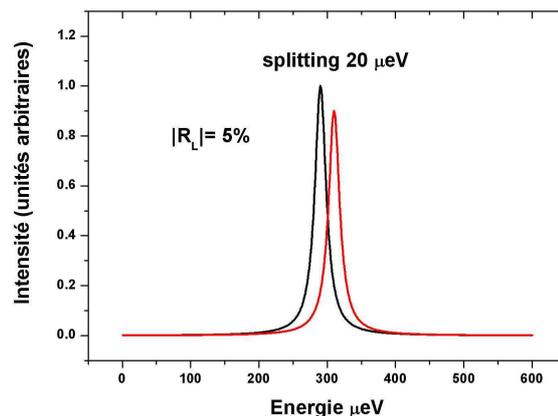


FIG. 4.2.9 – Modélisation de la structure fine de la photoluminescence d'une boîte quantique unique dans le cas de l'exciton lourd : deux raies polarisées linéairement orthogonales selon  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$  et d'intensités proches.

### 4.2.6 Modélisation de l'anisotropie optique et comparaison avec l'expérience

#### Anisotropie de polarisation dans le cas de l'exciton lourd

La structure fine de la transition fondamentale impliquant l'exciton lourd est donc constituée de deux transitions polarisées linéairement suivant X et Y. Si nous voulons comparer leurs forces d'oscillateur, nous devons à partir de l'équation 4.2.15 évaluer :

$$|\langle \psi_v | \hat{\epsilon}_{[1\bar{1}0]} \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle|^2 \quad \text{et} \quad |\langle \psi_v | \hat{\epsilon}_{[110]} \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle|^2 \quad (4.2.59)$$

L'action de  $\vec{p}$  fait apparaître des contributions similaires à celles données par le terme  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  et en utilisant le fait que  $u_{c\vec{0}}$  et  $u_{v\vec{0}}$  sont orthogonales, nous trouvons :

$$|\langle \psi_v | \hat{\epsilon}_{[1\bar{1}0]} \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle|^2 = \frac{P_0}{\sqrt{2}} \left( \langle \xi_h | \xi_e \rangle + \left( \frac{\hbar}{m_0 \epsilon_g} \right)^2 \frac{(P_0)^2}{2} \left[ \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial y} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial x} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (4.2.60)$$

et

$$|\langle \psi_v | \hat{\epsilon}_{[110]} \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle|^2 = \frac{P_0}{\sqrt{2}} \left( \langle \xi_h | \xi_e \rangle - \left( \frac{\hbar}{m_0 \epsilon_g} \right)^2 \frac{(P_0)^2}{2} \left[ \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial y} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial x} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (4.2.61)$$

Pour nous,  $\vec{x}=[1\bar{1}0]$  et  $\vec{y}=[110]$  et la prise en compte du terme  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , de part le mélange de bandes qu'il introduit, confère aux transitions X et Y des forces d'oscillateur différentes pour peu que la différence  $\left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial y} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial x} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial x} \right\rangle$  soit non nulle. Cette différence est nulle dans le cas d'une symétrie circulaire de l'enveloppe mais elle devient non nulle dès que l'enveloppe a une symétrie plus réduite.

Le taux de polarisation linéaire des forces d'oscillateur s'écrit alors :

$$T_L = \frac{I_X - I_Y}{I_X + I_Y} = \left( \frac{\hbar}{m_0 \epsilon_g} \right)^2 \frac{(P_0)^2}{2} \left[ \frac{\left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial y} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \xi_h}{\partial x} \middle| \frac{\partial \xi_e}{\partial x} \right\rangle}{\langle \xi_h | \xi_e \rangle} \right] \quad (4.2.62)$$

Ce taux résulte du mélange de bandes correctif introduit en perturbation par la méthode  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  et de l'asymétrie de l'enveloppe. Cette correction est faible puisqu'elle intervient dans le calcul des fonctions d'ondes avec un dénominateur en énergie qui est le gap  $\epsilon_g$  de notre boîte quantique, c'est à dire une énergie grande par rapport aux énergies intrabandes.

Aleksandar Jankovic a calculé au cours de ses travaux de thèse ce taux de polarisation linéaire pour une boîte quantique elliptique (grand côté b, petit côté a) de rayon moyen fixé à 10 nm en fonction de son ellipticité  $\varepsilon (= \frac{b^2}{a^2} - 1)$  et pour

une boîte d'ellipticité donnée en fonction de son rayon moyen (voir figure 4.2.10). Ses résultats montrent que la correction  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  introduit dans une boîte elliptique un taux de polarisation linéaire de quelques pourcents. Les valeurs maximales obtenues dans d'autres de ses simulations sont de 10 % en valeur absolue avec une ellipticité de 8.

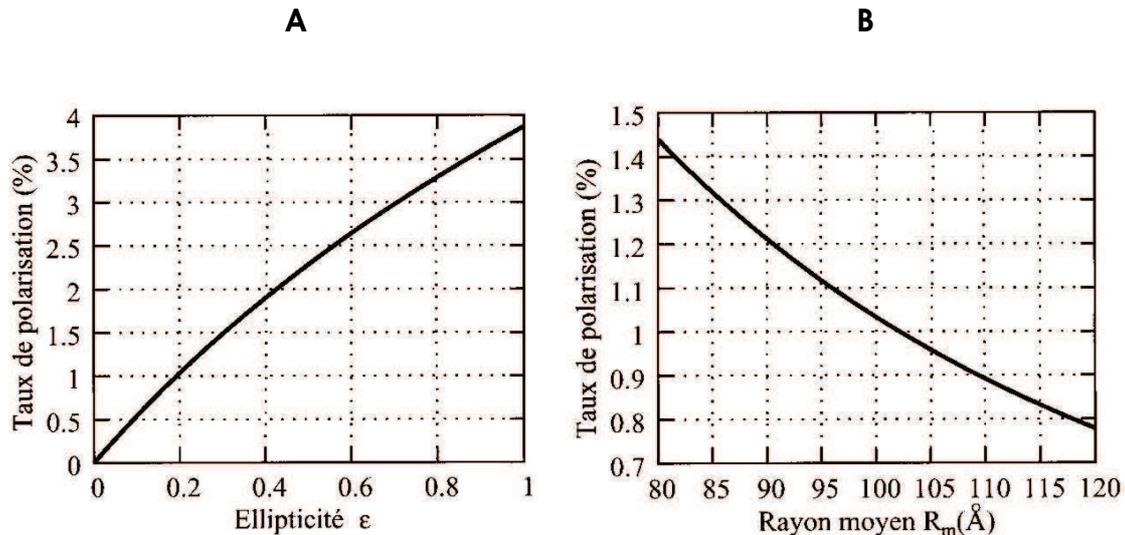


FIG. 4.2.10 – A : Evolution du taux de polarisation en fonction de l'ellipticité  $\varepsilon$  à rayon moyen fixé de 10 nm. B : Evolution du taux de polarisation en fonction du rayon moyen  $R_m$  à ellipticité constante  $\varepsilon = 0.2$  [43].

Nous retiendrons donc le résultat suivant : lorsque les taux de polarisation linéaire observés ne sont que de quelques pourcents (moins de 10 % pour fixer les idées), ce qui est le cas sur l'ensemble de boîtes de l'échantillon E ou sur les boîtes uniques des échantillons B et D de type zone 3D, nous pouvons comprendre les propriétés de polarisation anisotrope des boîtes quantiques *InAs/GaAs* à l'aide d'une description ne comprenant que des états de valence de type trous lourds.

Pour les boîtes uniques des échantillons A et C de type zone frontière par contre, une description basée sur les trous lourds ne permet pas d'expliquer les anisotropies optiques élevées observées correspondant à  $R_L = 80\%$ .

### Anisotropie de polarisation dans le cas d'un mélange trous lourds-trous légers

Nous avons montré précédemment des taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de 80% sur boîte unique. Une description de la transition fondamentale n'impliquant que les états de trous lourds apparaît insuffisante à décrire un tel phénomène.

Les recherches menées sur les fils quantiques au début des années 90 ont déjà permis de révéler dans des spectres d'excitation de la photoluminescence de violentes anisotropies optiques (45% dans la référence [128]) dans le plan (X,Y) des transitions interbandes de ces objets 1D. Ces anisotropies ont été qualitativement expliquées sur le plan théorique par un mélange des bandes de valence : les états impliqués dans les transitions interbandes comportent des composantes trous lourds mais aussi des composantes trous légers. L'explication quantitative a nécessité de prendre en compte, en plus, les effets polarisants de la réponse diélectrique locale.

Nous rappelons ici pourquoi le mélange lourd-léger au niveau des états de valence induit une anisotropie optique [129] :

En considérant uniquement les deux bandes de trous lourds et les deux bandes de trous légers (que l'on a numérotées précédemment 3,4,5 et 6), un état de valence dans l'approche fonctions enveloppes, que ce soit dans un fil quantique ou dans une boîte quantique, s'écrit :

$$\psi_v(\vec{r}) = \sum_{i=3,4,5,6} \xi_i^h(\vec{r}) u_{i\vec{0}} \quad (4.2.63)$$

Si on a découpé bandes de conduction et bandes de valence, alors l'état de conduction s'écrit à l'ordre 0 :

$$\psi_{c,i}(\vec{r}) = \xi^e(\vec{r}) u_{i\vec{0}} \quad i = 1, 2 \quad (4.2.64)$$

et l'élément de matrice interbande est donné dans l'approximation dipolaire par [42] :

$$\sum_{i=1,2} |\langle \psi_{c,i} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | \psi_v \rangle|^2 = \sum_{i=1,2} \left| \sum_{j=3,4,5,6} I_j \langle u_{i\vec{0}} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | u_{j\vec{0}} \rangle \right|^2 \quad (4.2.65)$$

où les  $I_j = \langle \xi^e | \xi_j^h \rangle$  sont les intégrales de recouvrement qui déterminent les règles de sélection de la transition d'après les symétries des fonctions enveloppes.

Ici on s'intéresse à la lumière se propageant selon z et le vecteur polarisation  $\varepsilon$  est donc dans le plan (X,Y). Appelons  $\varphi$  son angle par rapport à l'axe X. Les symétries des fonctions atomiques  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$  ( $n = 1..6$ ) impliquent dans le cas où  $\varepsilon$  est dans le plan que seuls 4 éléments de matrice dipolaire entre fonctions atomiques sont non nuls, ce sont [129] :

$$\langle u_{1\vec{0}} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | u_{3\vec{0}} \rangle = \frac{m_0 P_0}{\sqrt{2}} e^{i\varphi} \quad \langle u_{1\vec{0}} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | u_{6\vec{0}} \rangle = -\frac{m_0 P_0}{\sqrt{6}} e^{-i\varphi} \quad (4.2.66)$$

et

$$\langle u_{2\vec{0}} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | u_{4\vec{0}} \rangle = -\frac{m_0 P_0}{\sqrt{2}} e^{-i\varphi} \quad \langle u_{2\vec{0}} | \hat{\varepsilon} \cdot \vec{p} | u_{5\vec{0}} \rangle = \frac{m_0 P_0}{\sqrt{6}} e^{i\varphi} \quad (4.2.67)$$

L'élément de matrice interbande se réduit alors à :

$$(m_0 P_0)^2 \left( \frac{a_3^2 + a_4^2}{2} + \frac{a_5^2 + a_6^2}{6} - \frac{a_3 a_6}{\sqrt{3}} \cos(\alpha_3 - \alpha_6 + 2\varphi) - \frac{a_4 a_5}{\sqrt{3}} \cos(\alpha_5 - \alpha_4 + 2\varphi) \right) \quad (4.2.68)$$

où  $a_j$  et  $\alpha_j$  sont les modules et les phases des intégrales de recouvrement  $I_j = a_j e^{i\alpha_j}$ .

On voit sur cette expression que l'anisotropie optique dans le plan (X,Y), qui correspond à la dépendance de l'élément de matrice en  $\varphi$ , n'existe que s'il y a un mélange lourd-léger dans les états de valence. Sinon,  $a_3$  et  $a_4$  sont nuls ou bien  $a_5$  et  $a_6$  sont nuls et alors il n'y a plus de termes oscillants en  $\varphi$ .

Ulrich Bockelmann a calculé dans une variété de fils quantiques l'anisotropie résultant de ces termes en  $\varphi$  dans l'absorption interbande et a obtenu des taux de polarisation linéaire de l'absorption qui peuvent approcher les 100% [130].

Dans le cas des boîtes quantiques, une asymétrie très violente du potentiel de confinement pourrait induire en présence de trous légers des anisotropies en luminescence de magnitude comparable. Dans la première description théorique que nous avons donnée de la transition fondamentale, nous n'avons considéré que les trous lourds, ce qui correspond à une image où les trous légers sont repoussés loin en énergie par des effets de contrainte bi-axiale dans la boîte quantique. En réalité, c'est une image fortement inspirée de la physique des puits quantiques et qui ne correspond peut-être pas à la réalité de la situation. En effet, la croissance des boîtes par le mode Stransky-Krastanov est une transition complexe dans l'organisation de la surface épitaxiée. Elle dépend de beaucoup de paramètres et peut résulter en une grande variété d'états de contrainte des boîtes quantiques obtenues. Notamment si la boîte n'est pas uniquement sous contrainte biaxiale mais si d'autres composantes sont présentes (cisaillements par exemple), il est visible sur l'hamiltonien des contraintes écrit plus haut au paragraphe 4.2.2, équation 4.2.10, qu'il existe de multiples situations où trous lourds et trous légers sont mélangés. En réalité, c'est la couche de mouillage avant nucléation des boîtes qui est sous contrainte bi-axiale et à ce jour aucune simulation n'a pu modéliser la complexité de la transition de nucléation dans une situation réelle et l'état des contraintes dans les boîtes qui en résulte.

D'un point de vue théorique, il existe cependant nombre de modélisations permettant de calculer les états de contrainte dans les boîtes en fixant une géométrie (pyramide à base carrée, à base circulaire) pour une boîte idéalisée purement en *InAs* dans une matrice *GaAs* et en déterminant numériquement le champ des déformations qui minimise l'énergie de contrainte du système. Ces modélisations donnent en général pour résultat que les états de valence ont une composante trous légers minoritaire de l'ordre de 10% [126, 125] dans des boîtes de géométrie assez plate. Dans le cas de boîtes plus hautes (où les confinements latéral et vertical deviennent comparables), les travaux du groupe d'Alex Zunger

[126] prévoient un premier état de valence dans la boîte qui n'est qu'à 70% de type trou lourd, montrant que même dans une boîte idéale, sans effet de composition ou anisotropie locale du champ de contrainte, on peut s'écarter déjà fortement de l'image d'une boîte essentiellement sous contrainte biaxiale.

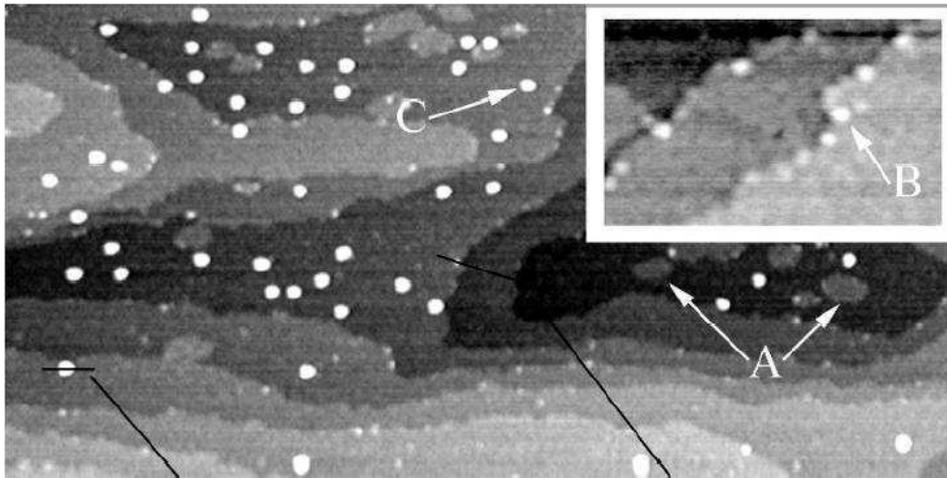


FIG. 4.2.11 – *Topographie AFM  $2 \times 1 \mu\text{m}^2$  de 1.5 monocouches d'InAs sur GaAs (001). On distingue la présence de marches mono-atomiques d'InAs révélées par les différentes teintes de gris. L'encart est un zoom sur de petites boîtes qui nucléent préférentiellement en haut et au bord de ces marches (boîtes de type B). Les boîtes de type C sont des boîtes un peu plus grandes et de forme similaire, alors que les boîtes de type A sont à base très large et ne font qu'une monocouche de haut [131].*

D'un point de vue expérimental, des observations de la nucléation des boîtes à différentes étapes du processus ont été effectuées à l'AFM à haute résolution [131]. Elles ont permis de mettre en évidence de fortes anisotropies structurales de la surface de la couche de mouillage lors de l'apparition des boîtes. On observe lors de cette transition la présence de marches monoatomiques alignées dans des directions préférentielles, aux bords desquelles nucléent majoritairement des boîtes de petite taille. Les boîtes de grosse taille apparaissent quant à elles plutôt en des zones plates de la surface (voir figure 4.2.11). Ces résultats démontrent, entre autre, que l'organisation de la surface est très anisotrope lors de la nucléation, ce dont aucune des modélisations précédemment citées n'est capable de rendre compte. Cette forte anisotropie de la surface suggère la présence possible de champs de contrainte locaux fortement unidirectionnels. Dans cette situation, on peut imaginer le cas de figure suivant : une boîte a nucléé en opérant une relaxation des contraintes à volume constant mais cette relaxation s'est produite de façon anisotrope, donnant lieu à un champ des déformations nul selon  $z$  mais respectant  $\varepsilon_{xx} = -\varepsilon_{yy}$ . Dans un tel cas limite,  $3\varepsilon_{zz} - \varepsilon = 0$  dans l'hamiltonien réduit des contraintes écrit sur  $\Gamma_8$  au paragraphe 4.2.2 (équation 4.2.10) : trous

lourds et légers restent alors dégénérés au centre de la zone de Brillouin.

Il ne faut donc pas rejeter la présence des trous légers dans la description des états de valence d'une boîte quantique. Une croissance plus irrégulière qu'une autre peut donner naissance à des boîtes où leur rôle est important, alors qu'il peut être plus faible lorsqu'une croissance régulière fournit des boîtes proches des boîtes idéalisées des études [126, 125], à base circulaire ou carrée et de composition uniforme. Pour trancher entre les deux cas de figure, nous sommes limités par l'impossibilité d'obtenir des études structurales des champs de déformation sur les boîtes uniques que nous étudions. Nous ne pouvons nous baser que sur des résultats de modélisation des boîtes après croissance qui ne représentent pas forcément la complexité des choses.

En conclusion, nous considérerons que les boîtes uniques que nous avons étudiées et qui présentent de forts taux de polarisation linéaire en luminescence (plus de 10%) sont des boîtes dans lesquelles les trous légers peuvent jouer un rôle important, et donc des boîtes à fortes anisotropies structurales, que ce soit de par leur géométrie même ou de par l'anisotropie de leur champ de déformation.

Le fait que nous observions en zone diluée des taux de polarisation linéaire de la luminescence élevés montre que cette zone possède probablement des propriétés structurales particulièrement anisotropes, ce que les études AFM à haute résolution montrées en figure 4.2.11 suggèrent également. Il a de plus été montré que la phase de recouvrement des boîtes par la "capping layer" lors de la fabrication de l'échantillon joue un rôle dissymétrisant sur la forme des boîtes en zone frontière, lorsque celles-ci sont assez éloignées les unes des autres [132], accentuant leur élongation selon une direction dans cette zone. La zone frontière est donc une zone particulièrement susceptible de posséder des boîtes de géométries non conventionnelles et d'états de contrainte variés, sans doute parce qu'à la transition de nucléation même, la relaxation des contraintes est très sensible aux détails de la situation et se fait de façon plus aléatoire d'un point à l'autre.

En présence de trous légers dans les états de valence, la structure fine de la transition fondamentale est toujours constituée de deux transitions polarisées linéairement selon X et Y (pour peu que ce soit selon ces axes que la symétrie ait été rompue) [126, 133]. Il est à noter de plus que le splitting d'échange entre les deux transitions, à cause de la présence des trous légers, est non nul même lorsque le potentiel de confinement à une symétrie parfaitement  $D_{2v}$  [133], contrairement aux cas des excitons purement lourds. Les forces d'oscillateur de ces deux transitions peuvent en revanche être très différentes, comme nous venons de le voir.

Finalement, la présence de trous légers n'altère que partiellement la description de la structure fine de la transition fondamentale que nous avons donnée précédemment dans le cas des trous lourds : elle comprend toujours deux transitions polarisées linéairement suivant X et Y, cette fois de forces d'oscillateur

qui peuvent être très différentes, séparées par un splitting d'échange de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$ .

### 4.2.7 Evolution du splitting d'échange

Nous avons vu précédemment dans le cas d'une description avec les trous lourds que l'apparition du splitting d'échange anisotrope longue portée était produite par une réduction de symétrie du potentiel de confinement dans la boîte. Ce splitting est donc une signature de l'anisotropie structurale de la boîte (forme géométrique, état de contrainte anisotrope...).

Aleksandar Jankovic a étudié pendant sa thèse la dépendance de ce splitting en fonction de l'anisotropie de forme d'une boîte elliptique allongée selon X et de sa taille. Il a effectué ces études dans le cadre théorique que nous avons développé en détail précédemment, où les états de valence sont exclusivement de type trou lourd.

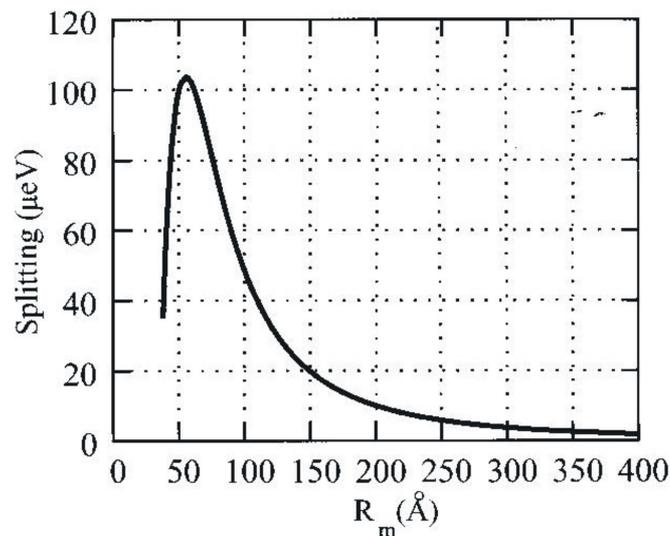


FIG. 4.2.12 – Evolution du splitting d'échange en fonction du rayon moyen  $R_m$  d'une boîte d'ellipticité  $\epsilon = 0.2$  et de hauteur 2.5 nm.

Dans cette description, l'ellipticité de la boîte étant une mesure de son anisotropie structurale, le splitting croît avec elle. L'évolution du splitting en fonction de la taille d'une boîte quantique d'ellipticité et de hauteur fixées peut se comprendre de la sorte : lorsque la taille latérale de la boîte est trop petite, les fonctions d'onde des porteurs ne sont pas sensibles au détail du potentiel de confinement et l'interaction d'échange anisotrope longue portée est faible ; lorsque la taille latérale augmente en revanche, le recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou tend à diminuer et conduit à une réduction

de l'interaction coulombienne à l'origine de l'échange, on observe alors une diminution du splitting. Nous reportons en figure 4.2.12 le résultat du calcul effectué par Aleksandar Jankovic [43].

Pour des tailles latérales standard de boîtes, entre 5 et 30 nm, ce calcul prévoit une décroissance du splitting avec la taille de la boîte. Or dans une approche simple du calcul des états d'une boîte quantique, notamment sans l'inclusion de champs de contrainte, il existe une corrélation directe entre l'énergie d'émission d'une boîte et sa taille : à hauteur de boîte constante, plus l'extension latérale de la boîte est petite, plus son énergie d'émission est grande [64]. Cette analyse théorique prévoit donc une valeur du splitting d'échange qui augmente avec l'énergie d'émission.

Ce n'est pas ce que nous avons vu en figure 4.1.1. Sur l'ensemble de boîtes de l'échantillon E, la corrélation est de sens opposée : le splitting d'échange diminue avec l'énergie d'émission. Une évolution similaire avait déjà été observée sur une série d'échantillons de boîtes recuits [134] et des travaux récents réalisés à l'Université Technique de Berlin [135] font état de la même évolution du splitting avec l'énergie d'émission et proposent une modélisation théorique prenant en compte l'état de contrainte de la boîte. Cette modélisation, par les effets piezo-électriques qu'elle permet d'inclure, inverse la corrélation entre splitting d'échange et énergie d'émission à laquelle nous nous attendions et explique l'évolution observée sur l'échantillon E. Nous en déduisons que, alors que notre description théorique de la transition fondamentale n'incluant que les trous lourds décrit bien les anisotropies de polarisation sur l'ensemble dense de boîtes de l'échantillon E, elle doit être améliorée et tenir compte des effets de contrainte pour pouvoir reproduire l'évolution du splitting d'échange en fonction de l'énergie d'émission.

En revanche, c'est bien un splitting d'échange qui augmente avec l'énergie d'émission que nous avons observé en figure 4.1.12 sur les boîtes uniques des quatre échantillons A,B,C et D. Ces boîtes uniques sont issues de zones denses mais aussi de zones frontière dans lesquelles nous avons montré que l'état de contrainte est très différent d'une boîte à une autre. Nous pensons que c'est ce caractère aléatoire de l'état de contrainte de boîte à boîte en zone frontière qui est responsable de l'apparente corrélation observée en figure 4.1.12, qui est contradictoire avec les observations faites en zone dense. La compréhension fine de telles corrélations est en réalité un problème difficile puisque l'énergie d'émission et le splitting d'échange dépendent fortement du détail des contraintes et de la géométrie des boîtes, qui sont inconnues et trop difficiles à modéliser en zone frontière.

Les effets de contrainte et les anisotropies structurelles violentes dans ce type de zone perturbent beaucoup l'image simplifiée de la boîte quantique que nous avons donnée. Notamment sur un même échantillon, les axes d'élongation des boîtes (ou du moins les axes de polarisation préférentielle) semblent adopter les directions  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$  de façon aléatoire de boîte à boîte, ce qui est en

contraste avec les observations STM antérieures d'autres échantillons de type 3D qui rapportaient un alignement de toutes les boîtes selon la direction  $[1\bar{1}0]$  [90].

En revanche, nous avons constaté en figure 4.1.14, sur des boîtes uniques, une tendance à observer le même "signe" pour le splitting d'échange et le taux de polarisation linéaire de la photoluminescence correspondant à la transition fondamentale : cela signifie que, parmi les deux transitions polarisées linéairement selon X et Y, celle qui est à plus basse énergie est aussi souvent celle qui a la plus grande force d'oscillateur, ce qui est consistant avec notre description de la structure fine fondée sur les trous lourds.

#### 4.2.8 Conclusion

Nous garderons finalement cette image : dans les zones 3D, les boîtes sont assez régulières et peuvent être décrites correctement du point de vue de leurs propriétés électroniques et optiques à l'aide d'une approche simple ne comprenant que des trous lourds. C'est cette approche qui est utilisée très majoritairement dans les interprétations de résultats concernant le spin des porteurs dans une boîte quantique et nous en ferons également largement usage dans notre chapitre sur la dynamique du spin de l'exciton. Elle nous a permis de comprendre de façon détaillée comment l'interaction coulombienne au sein des porteurs confère une structure fine à la transition fondamentale. Dans les zones frontière, la situation est moins claire : nous pouvons nous écarter beaucoup de cette description simplifiée et observer de forts taux de polarisation linéaire en photoluminescence non-résonante au niveau de la transition fondamentale. Les effets de contrainte anisotrope sont importants dans des boîtes qui peuvent nucléer de façon très irrégulière et il faudra en tenir compte dans les interprétations. Par ailleurs, notre vision théorique du splitting d'échange ne nous permet pas de reproduire la variété des situations rencontrées en zone 3D ou en zone frontière. Là encore, les effets de contrainte semblent jouer un rôle important que nous n'avons pas modélisé.

## 4.3 Etude sous champ magnétique d'une boîte très anisotrope

Afin de comprendre plus finement la symétrie des états impliqués dans la transition fondamentale d'une boîte quantique anisotrope, nous avons voulu étudier en champ magnétique la luminescence sous excitation non-résonante de la boîte quantique 3 de l'échantillon A présentant un taux de polarisation linéaire de +82%. Rappelons que l'échantillon A exhibe souvent de fortes anisotropies optiques sur boîte unique.

Nos études en champ ont été menées à Grenoble en collaboration avec Lucien Besombes. Nous avons travaillé en configuration Faraday (champ aligné selon z)

avec une excursion de 0 à 11 Teslas. L'excitation non-résonante de la luminescence est faite à l'aide d'un laser Argon qui crée des porteurs au dessus du gap de GaAs.

### 4.3.1 Décalage diamagnétique et effet Zeeman

#### Résultats

Nous présentons en figure 4.3.13 les spectres de photoluminescence analysée en polarisations circulaires  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  à différents champs. Le choix de la base  $\sigma^+, \sigma^-$  est classique pour mener l'analyse en polarisation de la luminescence collectée le long de  $Z$  d'une boîte quantique car on s'attend, à haut champ (lorsque l'énergie apportée aux excitons par le champ magnétique devient supérieure à l'énergie d'échange), à observer une resymétrisation des états excitoniques dans la boîte, ce qui doit conduire à l'émission de photons  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Nous commentons en premier lieu sur la figure 4.3.13 le dédoublement de la raie observée en photoluminescence et le décalage des deux composantes.

La raie d'émission se dédouble à 0,5 Tesla et l'écart entre les deux composantes augmente de façon monotone lorsqu'on augmente le champ. Simultanément, la position moyenne des deux raies se déplace vers les hautes énergies.

Nous traçons en figure 4.3.14 le splitting entre les deux composantes en fonction de  $B$  et leur position moyenne en fonction de  $B^2$ .

Nous observons sur cette figure que le splitting évolue linéairement avec le champ avec un coefficient de proportionnalité de  $0.167 \text{ meV/T}$ , c'est l'effet Zeeman, et que la position moyenne des deux raies évolue quadratiquement avec le champ avec un coefficient de proportionnalité de  $5 \mu\text{eV/T}^2$ , c'est l'effet diamagnétique. Nos résultats peuvent donc se résumer en écrivant la position en énergie de chacune des deux raies, par rapport à la moyenne de leurs positions à champ nul, sous la forme :

$$E = \pm g_{ex} \mu_B \frac{B}{2} + \alpha B^2 \quad (4.3.69)$$

avec  $g_{ex} = 2.9$  et  $\alpha = 5 \mu\text{eV/T}^2$ .

#### Description théorique générale

Ces deux termes peuvent être compris sommairement si l'on considère qu'en présence d'un champ magnétique (et de son potentiel vecteur associé  $\vec{A}$ ), l'opérateur impulsion  $\vec{\Pi}$  d'un électron de charge (-e) est remplacé par  $\vec{\Pi} + e\vec{A}$ . Nous nous intéressons ici au cas d'un champ constant selon  $z$  et nous prenons comme potentiel vecteur  $\vec{A} = -\frac{\vec{r}}{2} \times \vec{B}$ . Nous pouvons alors écrire l'énergie cinétique d'une paire électron-trou (sans interaction) de masse respective  $m_e$  et  $m_h$  sous la forme [136] :

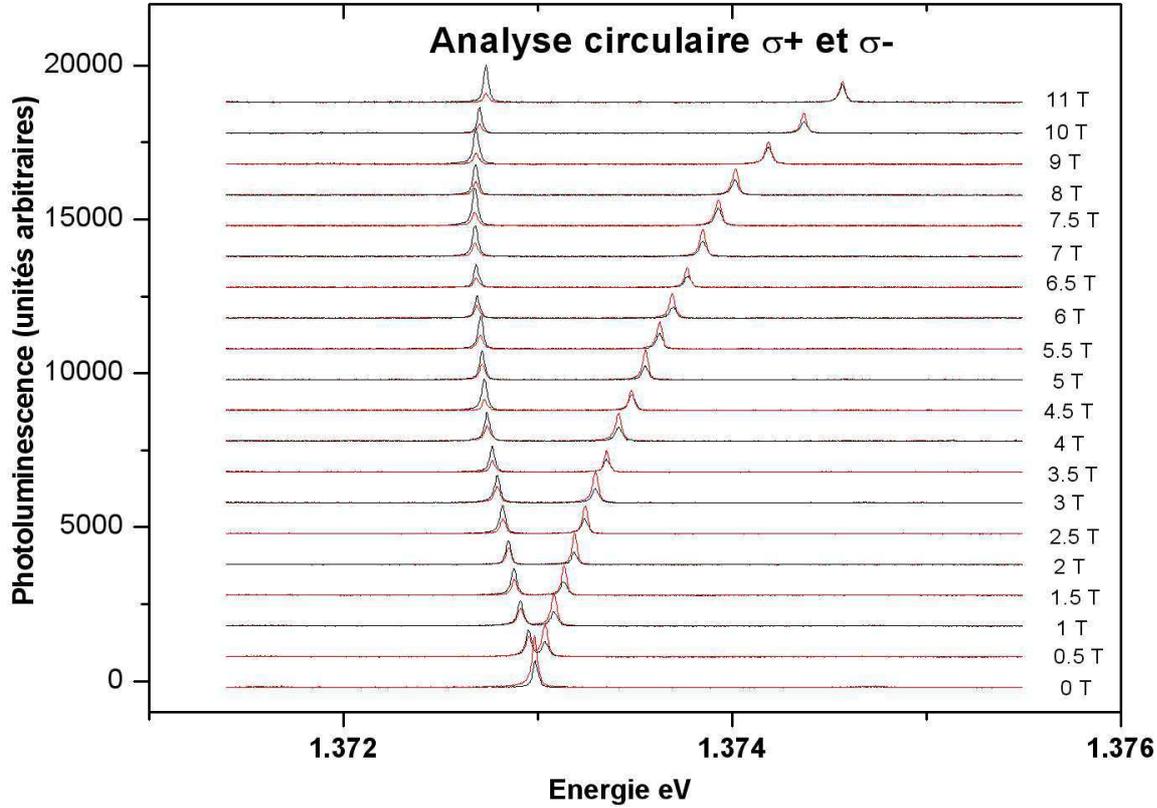


FIG. 4.3.13 – Photoluminescence non-résonante sous champ magnétique, analysée en polarisation circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ , de la boîte 3 de l'échantillon A.

$$E = \frac{1}{2m_e} [\vec{\Pi}_e + e\vec{A}]^2 + \frac{1}{2m_h} [\vec{\Pi}_h - e\vec{A}]^2 = \frac{1}{2m_e} [\vec{\Pi}_e - e\frac{\vec{r}_e}{2} \times \vec{B}]^2 + \frac{1}{2m_h} [\vec{\Pi}_h + e\frac{\vec{r}_h}{2} \times \vec{B}]^2 \quad (4.3.70)$$

que nous développons en :

$$E = E_0 + \frac{e\hbar}{2m_e} \vec{L}_e \cdot \vec{B} + \frac{e\hbar}{2m_h} \vec{L}_h \cdot \vec{B} + \frac{e^2}{8} B^2 \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle_{x,y}}{m_e} + \frac{\langle r_h^2 \rangle_{x,y}}{m_h} \right) \quad (4.3.71)$$

en notant  $\langle r_e^2 \rangle_{x,y}$  l'extension de la fonction d'onde de l'électron dans le plan (x,y) perpendiculaire au champ selon z et  $\vec{L} = \frac{\vec{r} \times \vec{\Pi}}{\hbar}$ .

Si nous ajoutons maintenant l'action du champ sur le spin de l'électron libre  $H_{spin} = g_0 \mu_B \vec{S}_e \cdot \vec{B}$  et sur le trou [111], il vient :

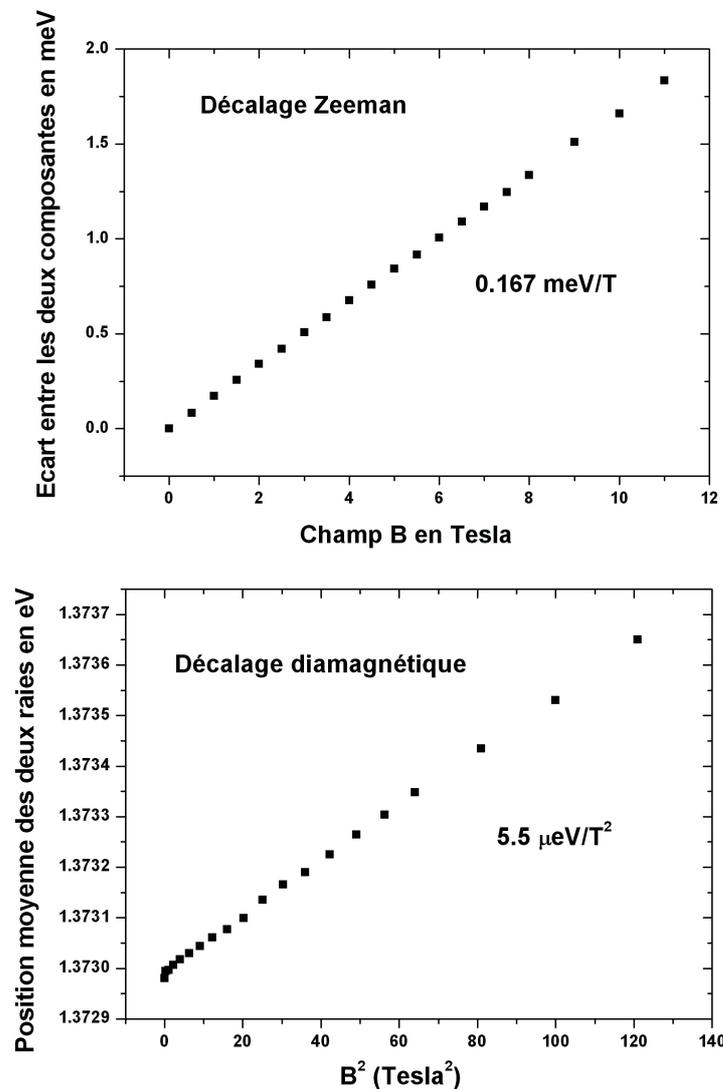


FIG. 4.3.14 – Décalages Zeeman et diamagnétique observés sur les spectres de photoluminescence au niveau de la transition fondamentale de la boîte 3 de l'échantillon A présentant un taux de polarisation linéaire de +82% en photoluminescence.

$$E = E_0 + \left( \frac{e\hbar}{2m_e} \vec{L}_e + g_0 \mu_B \vec{S}_e \right) \cdot \vec{B} + \left( \frac{e\hbar}{2m_h} \vec{L}_h + g_0 \mu_B \vec{S}_h \right) \cdot \vec{B} + \frac{e^2}{8} B^2 \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle_{x,y}}{m_e} + \frac{\langle r_h^2 \rangle_{x,y}}{m_h} \right) \quad (4.3.72)$$

$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_0}$  étant la valeur absolue du magnéton de Bohr, où  $m_0$  est la masse de l'électron libre et  $g_0$  est le facteur gyromagnétique pour l'électron libre.

Nous réécrivons ce résultat pour les deux excitons brillants sous la forme :

$$E - E_0 = E_h + \Delta E + \alpha B^2 \quad \text{avec} \quad \Delta E = g_{ex} \mu_B \vec{J}_{ex} \cdot \frac{\vec{B}}{2} \quad (4.3.73)$$

où  $E_h$  est l'énergie du trou. Cette expression nous permet d'introduire empiriquement un facteur gyroscopique pour l'exciton  $g_{ex}$  et nous donne une expression simple du coefficient de proportionnalité quadratique en champ :

$$\alpha = \frac{e^2}{8} \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle_{x,y}}{m_e} + \frac{\langle r_h^2 \rangle_{x,y}}{m_h} \right) \quad (4.3.74)$$

Cette description simple permet de rappeler l'origine commune de l'effet Zeeman et de l'effet diamagnétique : ces deux effets traduisent la relation étroite entre phénomènes optiques et magnétiques.

### Discussion

Plusieurs groupes ont mesuré des valeurs du décalage diamagnétique sur boîte unique InAs/GaAs allant de 7 à 15  $\mu\text{eV}/T^2$  [137, 94, 138] et ce sur des boîtes ne montrant pas d'anisotropie optique particulière en luminescence non-résonante, contrairement à celle que nous étudions ici. Si nous considérons que les excitons dans ces boîtes peuvent être décrits à l'aide de trous lourds uniquement, cela signifie que  $m_h$  est plus élevé dans les boîtes étudiées par ces groupes que dans la boîte que nous étudions ici pour laquelle il nous est apparu que les trous légers jouent un rôle important. Nous observons sur cette boîte un coefficient  $\alpha$  de 5  $\mu\text{eV}/T^2$  plus petit que ce que mesurent ces différents groupes : puisque  $m_h$  est plus petit sur cette boîte, cela signifie d'après la formule 4.3.74 que  $\langle r_e^2 \rangle_{x,y}$  et  $\langle r_h^2 \rangle_{x,y}$  sont eux mêmes plus petits dans cette boîte que dans les boîtes de [137, 94, 138]. Nos résultats sur le décalage diamagnétique dans la boîte 3 de l'échantillon A que nous étudions sont donc compatibles avec un diamètre petit de la boîte, ce que corrobore le fait que son énergie d'émission soit très élevée, 1.38 eV, et très proche de l'émission de la couche de mouillage (1.42 eV), alors que l'émission des boîtes des références [137, 94, 138] est centrée respectivement à 1.31, 1.30 et 1.30 eV.

Au chapitre II, nous avons déjà eu une signature de la petite taille des boîtes dans l'échantillon A, lorsque nous avons étudié leur couplage Huang-Rhys aux phonons acoustiques et montré que le seuil en température de l'apparition des ailes de phonons acoustiques était consistant avec des boîtes d'extension spatiale moyenne 5 nm. Nous ne savons pas s'il existe un lien entre le fait que les boîtes de l'échantillon A sont petites et le fait qu'elles sont structurellement anisotropes. Nous n'avons jamais observé sur les boîtes uniques de nos échantillons A, B, C et D de corrélation entre énergie d'émission et taux de polarisation linéaire de la luminescence sous excitation non-résonante.

Les résultats des déplacements Zeeman sur la boîte 3 de l'échantillon A ne nous amènent pas autant d'information. Notre boîte possède un facteur  $g_{ex} = 2.9$ , une valeur très similaire aux valeurs rapportées sur d'autres boîtes InAs (2.6 pour [137], 3 pour [94, 139] et entres 2 et 3 pour les boîtes variées de [138]). Nakaoka dans [138] développe une théorie tenant compte de l'état de contrainte de boîtes modèles et de leur composition pour calculer leur facteur  $g_{ex}$  : il prévoit, quelle que soit la composition, une décroissance de  $g_{ex}$  avec la taille de la boîte. Nous ne voyons aucune signature de cet effet sur notre boîte, qui présente un facteur  $g_{ex}$  complètement standard malgré une petite taille.

Le facteur  $g_{ex}$  est en réalité fonction de nombreux paramètres (taille, contraintes, composition, symétries des états de valence, impuretés magnétiques dans l'environnement) et il est difficile de tirer des conclusions quantitatives de notre valeur  $g_{ex} = 2.9$ . Nous aurions pu nous attendre par exemple à observer un facteur  $g_{ex}$  faible. En effet les états de valence dans cette boîte contiennent probablement une composante de trous légers, qui sont moins sensibles que les trous lourds à l'action d'un champ magnétique en configuration Faraday puisque leur fonction d'onde possède une composante parallèle au champ dans cette configuration. Pourtant la valeur que nous trouvons de  $g_{ex} = 2.9$  est égale à celle mesurée dans [94, 139] sur des boîtes dont les propriétés de polarisation en photoluminescence sont descriptibles en utilisant une approche n'incluant que les trous lourds.

Par ailleurs le comportement de l'écart en énergie entre les deux raies est parfaitement linéaire en champ, alors que la présence des trous légers aurait pu faciliter des effets de mélange de bandes dans les états de valence lors de la montée en champ, ce qui aurait résulté en des non-linéarités [140].

Nous concluons que nous manquons de précision dans notre compréhension du rôle joué par les contraintes sur le facteur  $g_{ex}$  et que nous ne pouvons pas interpréter toutes les tendances observées.

### 4.3.2 Analyse en polarisation

#### Polarisation circulaire

L'analyse en polarisation circulaire de la luminescence sous champ de notre boîte (figure 4.3.13) montre qu'à haut champ (11T), chacune des deux raies issues du dédoublement possède des composantes  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  de poids comparable. Ce résultat contraste fortement avec les résultats obtenus par d'autres groupes [94, 139] sur des boîtes plus régulières, où l'émission à haut champ se compose d'une raie polarisée  $\sigma^+$  et de l'autre polarisée  $\sigma^-$ .

Dans une boîte présentant une asymétrie structurelle faible, où une description de la transition fondamentale n'incluant que les trous lourds est correcte, la symétrie de rotation du champ magnétique en configuration Faraday finit par l'emporter à haut champ sur les asymétries de la boîte et les excitons sont à

nouveau bien décrits par les états  $J_z = +1$  et  $J_z = -1$ , que nous avons introduits au paragraphe 4.2.3 et qui se recombinaient radiativement en émettant des photons  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Cette resymétrisation des fonctions d'onde des excitons dans la boîte intervient lorsque l'énergie magnétique conférée par le champ à l'exciton brillant  $\frac{g_{ex}}{2}\mu_B B$  devient supérieure à l'énergie d'échange  $\Delta$ .

Avec un splitting d'échange de  $40 \mu eV$ , ce qui est une borne supérieure pour la boîte 3 de l'échantillon A, et  $g_{ex} = 2.9$ , cette resymétrisation devrait intervenir dès 1 ou 2 Tesla. Or il n'en est rien : même à 11 T, l'émission des deux raies n'est pas polarisée circulairement (figure 4.3.13). La boîte 3 est trop anisotrope pour permettre la restauration de symétrie à haut champ. Ceci nous montre que l'exciton dans cette boîte n'est pas correctement décrit par une analyse n'invokant que les trous lourds.

### Polarisation linéaire

Nous avons réalisé, à quelques valeurs intermédiaires du champ, une analyse en polarisation linéaire X et Y sur la même boîte 3 de l'échantillon A. Les résultats de cette analyse sont portés en figure figure 4.3.15.

A champ nul, nous retrouvons un taux de polarisation linéaire élevé ( $R_L = 82\%$ ) pour la photoluminescence. A 1 T, lorsque les deux raies Zeeman sont clairement résolues, le taux de polarisation linéaire est de 80% pour la raie basse énergie et de 50% pour la raie haute énergie. En augmentant le champ de 1 à 11 T, le taux de polarisation linéaire diminue globalement pour chacune des deux raies. A 7 T, il est de 89% pour la raie basse énergie et 80% pour la raie haute énergie. A 11 T, les taux pour ces deux raies sont respectivement de 78% et 50%.

A haut champ (11 T), le taux de polarisation linéaire de chacune des deux raies est toujours non nul, ce qui montre à nouveau que la restauration de la symétrie  $J_z = +1$  et  $J_z = -1$  des états brillants n'a pas lieu.

### Discussion

Notre analyse en polarisation, sous champ magnétique, de la photoluminescence de la boîte 3 de l'échantillon A vient confirmer ce que nous avons déjà supposé en analysant en polarisation linéaire sa photoluminescence non-résonante à champ nul : le champ de déformation dans cette boîte est probablement très anisotrope et ses propriétés ne peuvent être décrites qu'en invoquant la présence de trous légers dans les états de valence. Nous en avons une signature ici dans les analyses, en polarisations circulaires et linéaires, sous champ magnétique.

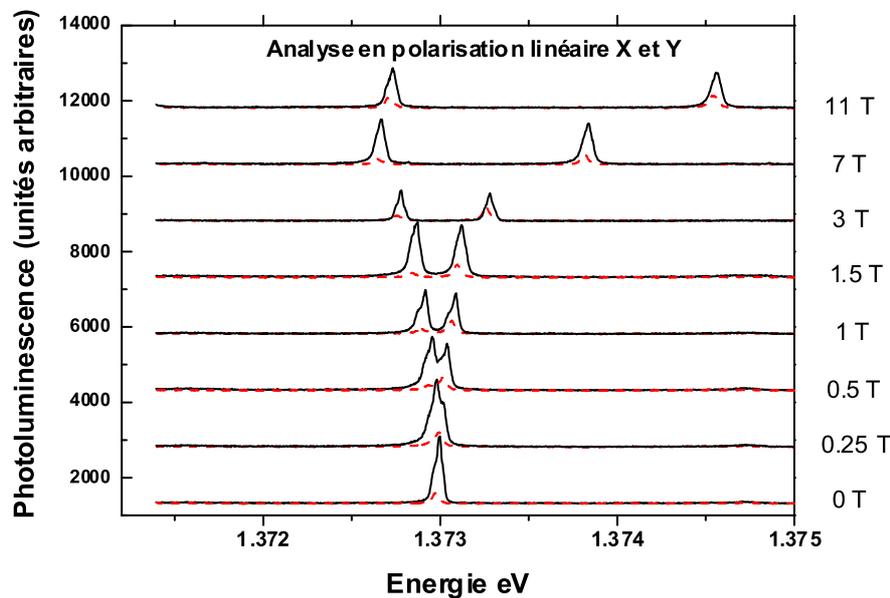


FIG. 4.3.15 – Analyse en polarisation linéaire  $X$  et  $Y$  du signal de luminescence non-résonante sous champ magnétique en configuration Faraday sur la boîte 3 de l'échantillon A.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la structure fine de la transition fondamentale, qui est composée d'un doublet. Ce doublet correspond à l'existence de deux états excitoniques brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Nous avons étudié expérimentalement deux aspects de cette structure fine : le splitting d'échange entre les deux composantes du doublet et l'anisotropie de polarisation résultant de leur différence de forces d'oscillateur.

Nous avons pu montrer que les anisotropies de polarisation observées en photoluminescence sous excitation non-résonante sur des boîtes quantiques dépendent beaucoup de la densité de boîtes.

Nous sommes parvenus à ce résultat par une étude systématique effectuée sur des échantillons denses en boîtes quantiques, obtenus à l'issue d'une croissance Stransky-Krastanov 3D pleinement développée, puis sur des échantillons à faible densité obtenus en s'arrêtant au seuil de nucléation lors de la croissance (zone frontière). Sur les deux types d'échantillon, nous avons également analysé le

comportement du splitting d'échange.

Pour des boîtes à forte symétrie en zone dense 3D, les anisotropies optiques sont faibles et les propriétés de polarisation de la photoluminescence des boîtes sont bien décrites par une approche théorique ne tenant compte que des trous lourds. Nous avons, dans ce cas, donné une description détaillée de l'interaction d'échange électron-trou qui gouverne le splitting du doublet, sans modélisation de l'état de contrainte dans les boîtes. Cette description seule ne permet pas de reproduire l'évolution du splitting d'échange en zone dense (sur l'échantillon E), qui diminue avec l'énergie d'émission, et il faut en réalité tenir compte des contraintes (qui sont assez régulières d'une boîte à l'autre en zone dense 3D) pour reproduire théoriquement les bonnes tendances.

Pour des boîtes plus anisotropes structurellement, que nous trouvons principalement en zone frontière à faible densité, une approche qui ne prend en compte que les trous lourds n'est plus valide : les fortes anisotropies de polarisation de la photoluminescence (sur l'échantillon A, nous avons observé des taux de polarisation linéaires géants, jusqu'à 82 %), ainsi que le comportement sous champ magnétique, suggèrent le rôle important joué par les trous légers. En zone frontière, nous n'observons plus une évolution aussi régulière pour le splitting d'échange en fonction de l'énergie d'émission, ce qui montre que les effets de contraintes y sont moins réguliers de boîte à boîte. Des études structurales à haute résolution dans ce type de zone pourraient certainement nous aider à modéliser plus finement ces effets, et éventuellement nous permettre d'en tirer un meilleur parti dans les applications.

Enfin, nous voyons que les symétries des états impliqués dans la transition fondamentale d'une boîte quantique peuvent varier fortement d'une boîte à une autre. Nous distinguons par nos travaux deux grandes classes de boîtes : celles, aux états de contrainte réguliers et à la géométrie proche d'une géométrie modèle, présentes en zone dense 3D et celles, aux états de contrainte très irréguliers et à la géométrie aléatoire, présentes en zone frontière diluée. Nous mettons en lumière le rôle particulièrement important joué par les contraintes, les effets de composition et les anisotropies géométriques dans les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques auto-organisées.

La modélisation de l'ensemble de ces effets, dans le but de reproduire la variété des situations observées dans les boîtes quantiques, est une tâche délicate mais nous montrons déjà que ces effets sont cruciaux pour l'utilisation des boîtes quantiques dans diverses applications, que ce soit pour la polarisation de l'émission des lasers à boîtes quantiques ou pour la réalisation de différents systèmes originaux dans le domaine du traitement quantique de l'information, comme la source de photons intriqués en polarisation présentée en introduction de ce chapitre [96]. Pour réaliser une telle source, notre étude montre qu'il convient, entre autres choses, de travailler avec une boîte qui ne présente pas d'anisotropie de polarisation en photoluminescence au niveau de sa transition fondamentale

(c'est à dire plutôt une boîte en zone dense), afin de s'assurer qu'elle possède une géométrie proche de celle d'une boîte modèle.

# Chapitre 5

## Dynamique du spin de l'exciton

Nous avons étudié au chapitre précédent la structure fine de l'exciton dans des boîtes quantiques InAs/GaAs et avons montré notamment qu'elle se traduit dans nos expériences par l'existence de deux raies polarisées linéairement selon les axes cristallographiques  $X=[1\bar{1}0]$  et  $Y=[110]$ . Dans la description théorique que nous avons donnée de cette structure fine, ces deux raies correspondent à deux états excitoniques  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  où  $X$  et  $Y$  sont les axes propres de l'anisotropie de la boîte.

Nous allons étudier dans ce chapitre la dynamique au sein de cette structure fine, c'est à dire la relaxation de la population entre les états propres  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de l'exciton dans la boîte, que nous appellerons relaxation du spin de l'exciton.

Dans une boîte quantique de semiconducteurs, de nombreux mécanismes de relaxation du spin des porteurs sont à priori gelés à cause du régime de confinement quantique. La possibilité de préparer et de préserver un état de spin sur un exciton dans une boîte ouvre de nombreuses perspectives d'applications dans le domaine des mémoires et de l'information quantique. Dans le groupe de Xavier Marie et Thierry Amand, une expérience de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation sur un ensemble inhomogène de boîtes a mis directement en évidence une relaxation très lente (10 ns) de l'orientation du spin de l'exciton neutre dans des boîtes InAs/GaAs [28]. D'autres expériences d'optique non-linéaire sur des ensembles de boîtes ont corroboré cette observation en évaluant indirectement des temps de relaxation du spin excitonique lents : une borne inférieure de 30 ns dans [88] et une valeur de  $28 \pm 9$  ns dans [93] accompagnée aux temps courts d'une relaxation partielle de l'orientation optique de l'exciton en  $40 \pm 15$  ps. Seule une expérience, de transmission différentielle sur des boîtes quantiques constituées de défauts d'interface dans un puits GaAs, a permis d'obtenir des informations à l'échelle de la boîte unique [18]. Cette expérience a montré que, dans de telles boîtes, la relaxation du spin de l'exciton s'opère à 7 K en 150 ps. Au moment de nos travaux, aucune information n'avait été obtenue sur boîte unique InAs/GaAs, les techniques résonantes et résolues

dans le temps restant difficiles à mettre en oeuvre à cette échelle.

Nous nous proposons dans ce chapitre d'aborder l'étude de la dynamique de spin de l'exciton dans les boîtes quantiques par une technique différente.

Après un rappel dans le paragraphe 5.1.1 sur les mécanismes de relaxation du spin dans le matériau massif, nous démontrons au paragraphe 5.2 un lien étroit entre la relaxation du spin de l'exciton dans une boîte, qui est un aspect purement dynamique, et l'anisotropie optique exhibée par la même boîte en photoluminescence sous excitation non-résonante, que nous avons interprétée au chapitre précédent comme résultant de paramètres purement statiques que sont les forces d'oscillateur des transitions associées aux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ .

S'appuyant sur ce lien, nous proposons et utilisons une technique qui permet, par la simple mesure du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de boîtes sous excitation non-résonante continue, de mesurer un temps de relaxation du spin de l'exciton tant sur un ensemble de boîtes qu'à l'échelle de la boîte unique. Sur un ensemble de boîtes InAs sous excitation non-résonante, nous montrons ainsi que l'orientation du spin de l'exciton est gelée à 10 K pendant plusieurs nanosecondes.

En utilisant la même technique sur des boîtes uniques, nous montrons ensuite au paragraphe 5.3 que la relaxation du spin de l'exciton peut également être très rapide, de l'ordre de quelques centaines de picosecondes, même à 10 K. Sur de telles boîtes, des expériences de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation permettent d'exhiber un temps relaxation de 100 ps à 5 K sur une boîte unique étudiée en détail [141]. Des études en fonction de la température mettent directement en évidence le rôle joué par les états noirs dans la dynamique de la population au sein de la structure fine et nous obtenons des informations quantitatives à ce sujet.

A l'aide d'expériences sur un ensemble de boîtes, nous montrons ensuite au paragraphe 5.4 qu'en modifiant les conditions d'excitation des boîtes, il est possible de faire varier le temps de relaxation du spin à 10 K de 40 ns à 300 ps. Nous interprétons cette modification comme le résultat d'un couplage du spin de l'exciton dans la boîte avec l'environnement dynamique de la boîte créé lors de l'excitation. Dans les cas où la relaxation du spin s'effectue en 300 ps à 10 K, nous observons qu'elle est ensuite ralentie lorsque la température augmente de 10 à 45 K, ce qui suggère un phénomène de type rétrécissement par le mouvement pour l'environnement dynamique.

## 5.1 Gel de la relaxation de spin dans une boîte quantique

### 5.1.1 Mécanismes de relaxation dans le massif

Commençons dans cette section par dresser un tableau des mécanismes de relaxation du spin des porteurs dans les semiconducteurs massifs, afin d'introduire vocabulaire et idées générales [142].

#### Mécanisme Elliot-Yafet

Nous avons vu dans le chapitre d'introduction, à travers le formalisme  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  dans le cadre du modèle de Kane, qu'un état électronique donné en  $\vec{k} \neq \vec{0}$  s'écrit sur une base d'états électroniques du centre de zone  $\{u_{n\vec{0}}\}_n$ . Or les éléments de cette base ont des états de spin divers, parfois "up" parfois "down", et donc un électron en  $\vec{k} \neq \vec{0}$  possède des composantes spin "up" et des composantes spin "down", qui dépendent de  $\vec{k}$ . Du point de vue physique, c'est l'interaction spin-orbite qui en est responsable : elle cause le mélange en  $\vec{k} \neq \vec{0}$  de fonctions d'onde électroniques d'orientation de spin différente.

Il en résulte que lors d'un processus de diffusion de l'impulsion de l'électron d'un état  $\vec{k}_1$  à un état  $\vec{k}_2$ , un changement d'orientation de son spin devient également possible. Il est fonction des symétries du cristal et de  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ . Si nous appelons  $\tau_{\vec{k}}$  le temps moyen de diffusion de l'impulsion, ce changement se fait avec un taux qui est proportionnel à  $\frac{1}{\tau_{\vec{k}}}$ .

L'interaction, au cours de son mouvement diffusif, d'un électron du massif avec des phonons, acoustiques ou optiques, ou avec des impuretés peut donner lieu, dans le cadre du mécanisme Elliot-Yafet, à une relaxation de son spin de magnitude très variable selon les situations : concentrations d'impuretés, types de couplage électron-phonon (matériau polaire ou pas, valeur du potentiel de déformation...), symétrie du cristal.

Nous retiendrons que ce sont les processus diffusifs en  $\vec{k}$  et le couplage spin-orbite qui sont responsables de ce mécanisme.

#### Mécanisme D'yakonov-Perel

C'est un mécanisme qui apparaît dans les cristaux qui ne possèdent pas de centre d'inversion, ce qui est le cas d'InAs et de GaAs, qui ont une structure zinc-blende. Encore une fois, nous partons de l'approche  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  pour en comprendre l'origine mais c'est toujours l'interaction spin-orbite qui est fondamentalement à la base du mécanisme D'yakonov-Perel.

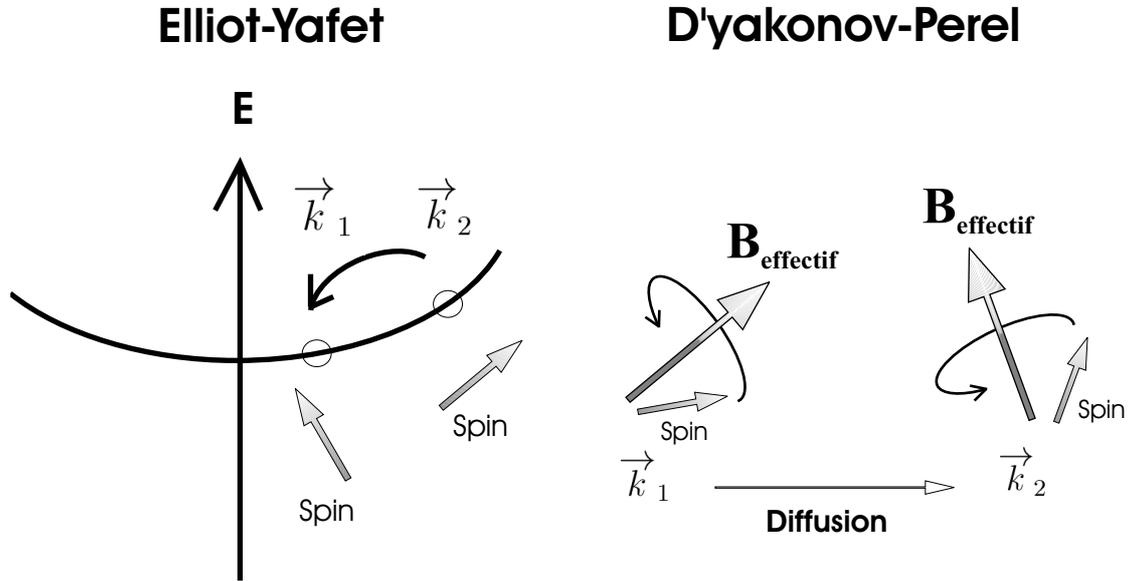


FIG. 5.1.1 – Image des mécanismes Elliot-Yafet et D'yakonov-Perel pour la relaxation du spin des porteurs dans les semiconducteurs massifs. Ces deux mécanismes sont basés sur la diffusion du vecteur d'onde et le couplage spin-orbite.

Bir et Pikus ont étendu le modèle de Kane [115] en prenant en considération l'influence d'autres bandes que les seules quatre utilisées par Kane (1<sup>ère</sup> bande de conduction, trous lourds, légers et SO, qui sont les bandes que nous avons utilisées pour notre description de la structure fine au chapitre précédent) pour proposer une écriture effective d'un hamiltonien  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  au sein de ces 4 bandes. Nous ne reproduirons pas leur hamiltonien ici, qu'on peut trouver dans [114] et dont nous avons écrit une version étendue par Badher au début du chapitre IV (équation 4.2.5).

Dans le cadre de cet hamiltonien  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  effectif, l'écriture à partir de la théorie des perturbations d'un hamiltonien effectif pour les électrons de la bande de conduction donne un terme cubique en  $\vec{k}$  :

$$H_c = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \Theta(\vec{\kappa} \cdot \vec{S}) \quad (5.1.1)$$

où  $\vec{S}$  est le spin de l'électron et  $\Theta$  un paramètre qui dépend du détail de la structure de bande, notamment de l'amplitude du splitting spin-orbite parmi les bandes de valence. Les composantes de  $\vec{\kappa}$  se déduisent par permutation circulaire à partir de l'expression de  $\kappa_z = k_z(k_x^2 - k_y^2)$ .

Sur cette dernière écriture, il apparaît clairement que la dégénérescence de la bande de conduction est levée dès que  $\vec{k} \neq \vec{0}$  : deux électrons de même  $\vec{k}$  mais de spins opposés n'ont pas la même énergie. Tout se passe en fait comme si ces

deux électrons étaient plongés dans un champ magnétique effectif qui résulte en fait du détail de la symétrie du cristal. Ce champ magnétique effectif dépend en orientation et en magnitude du vecteur  $\vec{k}$ .

Il génère une précession du spin de l'électron qui se fait avec le temps caractéristique  $\tau_{précession}$  et puisqu'à chaque événement de diffusion de l'électron,  $\vec{k}$  est amené à changer et avec lui la direction du champ effectif, cette précession se fait autour de directions aléatoires au cours du mouvement diffusif de l'électron. Si  $\tau_{précession} \ll \tau_{\vec{k}}$ , l'orientation du spin de l'électron est ainsi perdue au cours de son mouvement diffusif, car il a le temps de précesser autour de chacune des directions aléatoires après chacun des événements de diffusion. Si  $\tau_{précession} \gg \tau_{\vec{k}}$  en revanche, la direction du champ effectif change à chaque fois avant que le spin de l'électron n'ait eu le temps de précesser : dans ce cas, le spin de l'électron voit un champ effectif moyen nul et son orientation est gelée au cours du mouvement diffusif. Ce dernier régime s'appelle le régime de rétrécissement par le mouvement pour le spin de l'électron. Dans ce dernier régime, le taux de relaxation de l'orientation optique de l'électron est proportionnel à  $\frac{1}{\tau_{\vec{k}}}$ .

Notons qu'il faut trois ingrédients au mécanisme D'yakonov-Perel : de la diffusion et du couplage spin-orbite, comme pour le mécanisme Elliot-Yafet, et en plus l'absence de centre d'inversion du cristal. Le mécanisme D'yakonov-Perel a été beaucoup étudié dans les hétérostructures de semiconducteurs, où il a été montré être prépondérant dans la dynamique de spin à haute température.

### Mécanisme Bir-Aronov-Pikus

Ce mécanisme, qui concerne toujours la relaxation du spin d'un électron, prend place lorsque celui-ci est en présence d'une concentration non-nulle de trous, ce qui arrive dans les cristaux dopés de type p par exemple.

Nous avons vu au chapitre précédent que l'interaction coulombienne au sein des électrons dans un cristal massif donne lieu à une interaction d'échange effective électron-trou. Cette interaction couple le spin de l'électron à celui du trou : le spin de l'électron précesse en quelque sorte autour du champ magnétique local effectif créé par le spin du trou. Cela peut jouer un rôle important lors du mouvement d'un électron de conduction : si sur son chemin, il rencontre en différents points des trous d'orientation de spin à chaque fois différente, son spin, au cours de son mouvement diffusif, va relaxer à cause de sa précession autour de chacune de ces orientations.

L'efficacité de ce mécanisme dépend évidemment beaucoup de la concentration de trous dans le système et repose fondamentalement sur l'interaction d'échange et non sur le couplage spin-orbite comme les deux mécanismes précédents.

### 5.1.2 Situation dans une boîte quantique

Que se passe-t-il quand nous passons à un système où le confinement des porteurs est assez fort pour interdire la propagation de leur fonction d'onde, comme c'est le cas pour nos boîtes quantiques de semiconducteurs ?

Nous avons vu que les mécanismes Elliot-Yafet et D'yakonov-Perel dans le matériau massif reposent sur la diffusion de l'électron. Dans une boîte quantique, si l'électron est dans un état lié, il y a moins d'événements de diffusion possibles et ces deux mécanismes doivent être gelés de façon importante.

Si nous appliquons un champ magnétique, l'effet Zeeman sépare le premier état lié de "conduction" de la boîte en deux sous-niveaux et il est possible de diffuser du sous-niveau  $\uparrow$  vers le sous-niveau  $\downarrow$  par exemple à l'aide du couplage spin-orbite et de phonons (s'ils sont présents, c'est à dire si nous sommes à  $T \neq 0$ ). De même, si la boîte possède une anisotropie du type de celles étudiées au chapitre IV, le niveau excitonique fondamental possède une structure fine résultant de l'effet de l'interaction d'échange et nous pouvons envisager une diffusion de l'état  $|X\rangle$  à l'état  $|Y\rangle$ . Ces cas de figure ont été étudiés théoriquement dans les boîtes quantiques à basse température pour différents champs, différentes tailles de boîtes [143, 144, 145, 146, 147] et donnent lieu à des temps de relaxation de spin de l'ordre de la milliseconde à basse température, c'est à dire très longs par rapport au temps de relaxation de spin caractéristique dans les semiconducteurs massifs, qui est de  $10^{-11} s$ . Cette évaluation théorique montre que, dans les boîtes quantiques, le gel des mécanismes de relaxation de spin basés sur la diffusion et le couplage spin-orbite permet d'augmenter d'un facteur  $10^5$  le temps de maintien de l'orientation du spin.

Qu'en est-il des mécanismes basés sur l'interaction d'échange ? Cela dépend, du point de vue d'un électron dans la boîte quantique, des éléments qui peuvent interagir par échange avec lui : en quel nombre sont-ils ? Sont-ils assez proches de lui pour interagir avec une grande amplitude ? Sont-ils eux-mêmes d'orientations de spin assez variées pour produire en moyenne une relaxation de son spin ? Nous reviendrons sur ces considérations plus loin dans le chapitre.

Prenons une situation modèle, celle d'une seule paire électron-trou dans la boîte. Nous avons vu au chapitre précédent que l'interaction d'échange se réduisait dans ce cas à une interaction effective d'échange entre l'électron et le trou. Les deux états propres de paire électron-trou sont alors les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  et il n'y a pas dans cette image de relaxation de l'état  $|X\rangle$  à l'état  $|Y\rangle$  due à l'interaction d'échange.

C'est cette situation qui a été étudiée expérimentalement dans le groupe de Xavier Marie et Thierry Amand en 2000 par une expérience de photoluminescence résonante résolue en temps et polarisation sur un ensemble de boîtes quantiques *InAs/GaAs* [28]. En excitant les boîtes quantiques de façon résonante sous la saturation, ils créent une situation où il y a en moyenne moins d'une paire

électron-trou par boîte. Il n'y a de porteurs créés que dans les boîtes et les phénomènes d'échange concernant l'exciton dans la boîte se réduisent à l'échange effectif électron-trou que nous avons décrit.

Les résultats de leur expérience sont très probants : en excitant les boîtes avec une polarisation linéaire  $X$  alignée sur l'axe  $[1\bar{1}0]$ , la photoluminescence observée reste polarisée selon  $X$  pendant toute la durée du processus radiatif (voir figure 5.1.2). Cela signifie que le spin des excitons  $X$  créés ne s'est pas désorienté et ce sur une période de temps plus grande que le temps de vie radiatif, qui est de l'ordre de la nanoseconde.

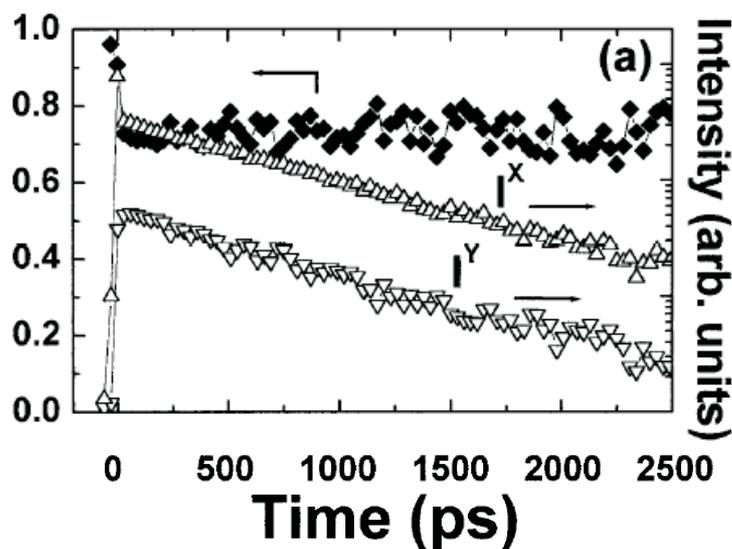


FIG. 5.1.2 – *Expérience de photoluminescence résolue en temps et en polarisation suivant  $X$  et  $Y$  d'un ensemble de boîtes après une excitation résonante polarisée linéairement suivant  $X$  [28]. La luminescence excitée suivant  $X$  reste polarisée suivant  $X$  pendant plusieurs nanosecondes, beaucoup plus longtemps que le temps de vie radiatif, ce qui est traduit par le taux constant de polarisation linéaire de la luminescence tracée en noir.*

Le spin de l'exciton dans une boîte quantique apparaît gelé pendant quelques dizaines de nanosecondes, ce qui est une signature du fait que les mécanismes de relaxation de spin que nous avons évoqués plus haut sont inhibés.

Il serait bien sûr intéressant de pouvoir réaliser la même expérience sur une boîte quantique unique, pour éviter les effets de moyenne apparaissant systématiquement dans les expériences sur des ensembles. Malheureusement, le niveau de signal sur une boîte unique est très faible et une telle prouesse n'a pour l'instant pas été réalisée.

Nous allons dans la suite de ce chapitre nous intéresser à la relaxation de population entre les états excitoniques  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , que nous appellerons relaxation

du spin de l'exciton. Notons ici qu'il s'agit d'un abus de langage puisque si les états brillants  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  sont bien des états propres de l'opérateur  $\vec{L} + \vec{S}$  pour la paire électron-trou, les états  $|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$  et  $|Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$  n'en sont pas et ce n'est que par extension que nous dirons que le "spin" de l'exciton relaxe lorsque la population de l'état  $|X\rangle$  relaxe vers l'état  $|Y\rangle$  par exemple.

## 5.2 Dynamique du spin excitonique et anisotropie optique

Nous présentons dans cette section une nouvelle approche expérimentale qui nous permet de sonder la relaxation de spin de l'exciton sous excitation non-résonante des boîtes quantiques. Par l'étude du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence d'un ensemble de boîtes en fonction de la température, nous montrons qu'il existe un lien entre la polarisation de la photoluminescence et la dynamique de relaxation du spin excitonique. Ce lien nous permet d'étudier cette dynamique en fonction de la température sur un ensemble et nous permettra ensuite d'aborder expérimentalement la question de la dynamique de relaxation du spin excitonique à l'échelle de la boîte unique.

### 5.2.1 Etude en température d'un ensemble de boîtes sous excitation non-résonante

Nous étudions la photoluminescence d'un ensemble de boîtes de l'échantillon E sous excitation non-résonante continue à 1.46 eV et effectuons des mesures de son taux de polarisation linéaire selon les axes X et Y. Rappelons qu'étant donné le fort signal de luminescence sur cet échantillon, nous sommes capables de mesurer les taux de polarisation linéaire avec une précision de 1%, c'est à dire beaucoup plus précisément que ce que nous avons décrit sur boîte unique au chapitre précédent.

La photoluminescence d'ensemble à basse température de cet échantillon est une raie inhomogène très large (80 meV) (voir figure 5.2.3).

Sur toute la gamme de température explorée, le taux de polarisation linéaire de cette photoluminescence d'ensemble est constant sur toute la raie et ne dépend pas de la polarisation du laser exciteur à 1.46 eV, ce qui traduit une perte de mémoire de la polarisation de l'excitation. A 10 K, le taux de polarisation linéaire est de +3.5%, ce qui révèle déjà une anisotropie moyenne des forces d'oscillateurs des transitions associées aux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sur les boîtes de cet échantillon. En augmentant la température, le taux de polarisation linéaire mesuré augmente de façon monotone pour saturer à une valeur maximale de 9% à partir de 70K

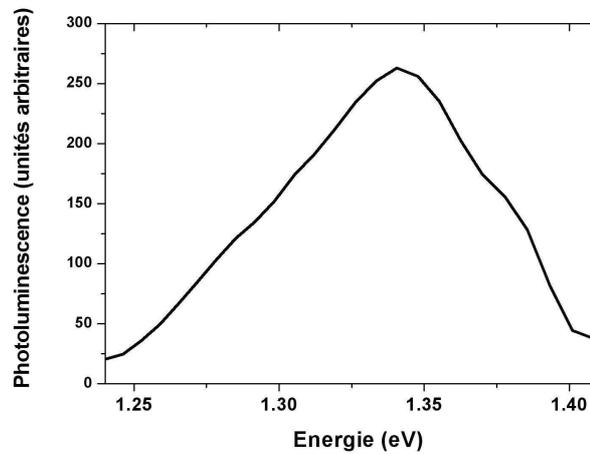


FIG. 5.2.3 – Photoluminescence de l'échantillon *E* à 10 K sous excitation non-résonante à 1.46 eV.

(figure 5.2.4). Le point d'inflexion de cette courbe se situe aux environs de 50 K. L'intensité de signal du photoluminescence intégré spectralement sur toute la raie inhomogène est constante de 10 à 100 K, ce qui nous permet d'exclure la présence de canaux non-radiatifs sur cet échantillon dans cette gamme de température.

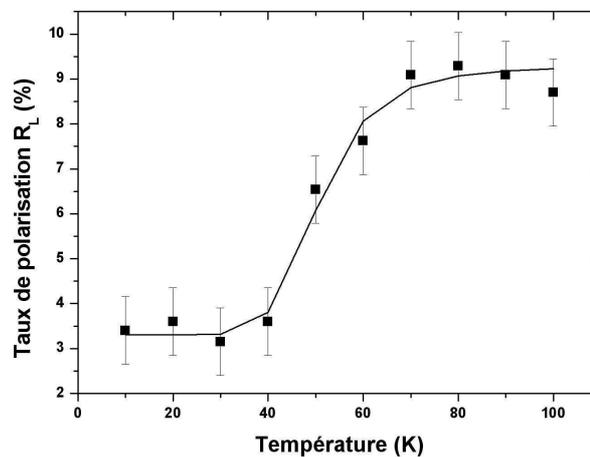


FIG. 5.2.4 – Taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de l'ensemble de boîtes de l'échantillon *E* en fonction de la température (carrés). En trait continu, accord donné par notre modèle avec une loi thermoactivée pour le taux de relaxation du spin de l'exciton dans les boîtes  $\gamma_s(T) = 0.46 + 9000 \exp \frac{-45\text{meV}}{kT}$  ( $\text{ns}^{-1}$ ).

Nous avons interprété au chapitre précédent les taux de polarisation linéaire de

la luminescence, observés sur des ensembles de boîtes comme sur boîtes uniques, comme le résultat de la différence de force d'oscillateur entre les deux transitions polarisées linéairement suivant X et Y au sein de la structure fine de la transition fondamentale. Nous voyons ici que cette interprétation n'est pas suffisante pour expliquer l'évolution du taux de polarisation avec la température, puisque les forces d'oscillateur sont indépendantes de la température. Nous allons voir que c'est la modification de la dynamique de relaxation du spin de l'exciton qui est responsable de cette évolution.

### 5.2.2 Relaxation du spin excitonique et polarisation du signal de photoluminescence

Nous modélisons à présent une expérience de photoluminescence non-résonante résolue en polarisation linéaire X et Y au niveau de la transition fondamentale d'une boîte quantique. Notre modélisation fait usage de trois niveaux (les deux états brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  et le vide d'exciton  $|g\rangle$ ) et d'équations aux populations.

Nous avons vu que le taux de polarisation linéaire mesuré sur l'ensemble de boîtes excité à 1.46 eV est indépendant de la polarisation choisie pour le laser exciteur, comme le sont les taux de polarisation linéaire mesurés sur boîte unique au chapitre précédent sous excitation à 1.96 eV. Cela signifie que la mémoire de la polarisation du laser exciteur a été perdue.

Nous pouvons donc modéliser la phase de photocréation des excitons dans les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de la façon suivante. Des paires électron-trou sont créées dans le GaAs ou dans la couche de mouillage avec une certaine orientation de spin puis perdent leur énergie via des processus de relaxation non-radiatifs. Cette cascade de processus de relaxation non-radiatifs brouille complètement l'orientation de spin des porteurs et la création d'excitons sur les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  localisés dans la boîte quantique se fait de manière équiprobable pour  $|X\rangle$  et pour  $|Y\rangle$ . Dans notre modèle, nous tiendrons compte de la photocréation en attribuant aux niveaux  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  des taux de photocréation égaux et nous noterons  $G$  ce taux commun.

Les forces d'oscillateur des deux transitions polarisées suivant X et Y étant en général différentes, nous notons  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$  les taux de recombinaison radiative différents des deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Nous n'incluons pas de canaux non-radiatifs, car nous cherchons à modéliser la photoluminescence à basse température, pour laquelle la recombinaison non-radiative est négligeable [148, 149]. Sur l'échantillon E entre 10 et 100 K, nous ne voyons en effet aucun trace des canaux non-radiatifs. Notre modèle se résume à ce stade à la partie a) de la figure 5.2.5.

Si  $n_X$  et  $n_Y$  sont les populations des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , les équations d'évolution des populations s'écrivent :

$$\frac{dn_X}{dt} = G - \gamma_X n_X \quad \frac{dn_Y}{dt} = G - \gamma_Y n_Y \quad (5.2.2)$$

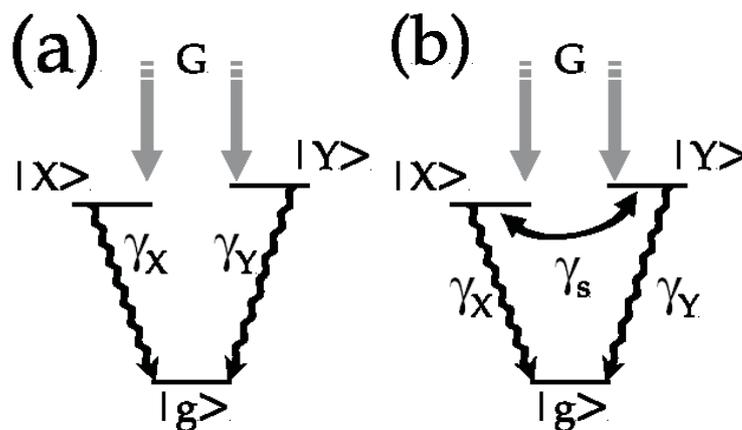


FIG. 5.2.5 – Modélisation à basse température de la photoluminescence sous excitation non-résonante continue d’une boîte quantique dont la structure fine de la transition fondamentale se compose de deux transitions polarisées linéairement  $X$  et  $Y$  de force d’oscillateur différente. Le schéma a) ne prévoit pas de relaxation de spin entre les deux états brillants. Il faut utiliser le schéma b) avec relaxation de spin pour rendre compte des anisotropies en polarisation de la photoluminescence.

et les populations stationnaires sont :

$$n_X = \frac{G}{\gamma_X} \quad n_Y = \frac{G}{\gamma_Y} \quad (5.2.3)$$

d’où des intensités de photoluminescence analysée selon  $X$  et selon  $Y$  :

$$I_X = \gamma_X n_X = \gamma_X \frac{G}{\gamma_X} = G \quad \text{et} \quad I_Y = \gamma_Y n_Y = \gamma_Y \frac{G}{\gamma_Y} = G \quad (5.2.4)$$

Dans le cadre de ce modèle, nous voyons que, même si les forces d’oscillateurs sont différentes pour les transitions  $X$  et  $Y$ , il y a autant de signal de photoluminescence polarisée suivant  $X$  que  $Y$ . Le taux de polarisation linéaire  $R_L$  de la luminescence est nul. Cela vient du fait que le rendement radiatif de ces deux niveaux  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  est de 100%. Toute l’énergie que nous envoyons dans le système se répartit également sur les deux états et est réémise intégralement sous forme de photons, la moitié polarisés  $X$  et l’autre moitié  $Y$ .

Le fait que nous observions expérimentalement une anisotropie optique de la photoluminescence sur une boîte possédant deux forces d’oscillateurs  $X$  et  $Y$  différentes est une preuve que ce premier modèle ne traduit pas correctement la réalité. Si nous voulons garder une description à trois niveaux, il nous faut en plus autoriser un transfert entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , c’est ce que nous appelons relaxation longitudinale du spin de l’exciton (par analogie avec le vocabulaire de

la RMN) et que nous avons représenté dans la partie b) de la figure 5.2.5. En ajoutant ce canal de relaxation, les équations aux populations sont :

$$\frac{dn_X}{dt} = G - (\gamma_X + \gamma_s)n_X + \gamma_s n_Y \quad \frac{dn_Y}{dt} = G - (\gamma_Y + \gamma_s)n_Y + \gamma_s n_X \quad (5.2.5)$$

où  $\gamma_s$  est le taux de relaxation longitudinale du spin. Les solutions en régime permanent sous excitation continue sont alors données par :

$$n_X = \frac{G(\gamma_Y + 2\gamma_s)}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad n_Y = \frac{G(\gamma_X + 2\gamma_s)}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad (5.2.6)$$

soit

$$I_X = \gamma_X n_X = \frac{G\gamma_X(\gamma_Y + 2\gamma_s)}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad I_Y = \gamma_Y n_Y = \frac{G\gamma_Y(\gamma_X + 2\gamma_s)}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad (5.2.7)$$

d'où une expression du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence :

$$R_L = \frac{I_X - I_Y}{I_X + I_Y} = \frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} \quad (5.2.8)$$

La relaxation du spin de l'exciton est un canal permettant d'égaliser les populations des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Et si les populations des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  s'égalisent, alors la différence des forces d'oscillateur  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$  entraîne une différence d'intensité de luminescence selon X et Y, c'est à dire une anisotropie de polarisation de la photoluminescence.

Cela se voit sur l'expression du taux de polarisation linéaire (équation 5.2.8), qui montre que si  $\gamma_s$  est grand devant  $\sqrt{\gamma_X \gamma_Y}$  (relaxation de spin rapide), ce taux vaut  $\frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y}$ , le taux donné par l'anisotropie des forces d'oscillateurs. Par contre si  $\gamma_s$  est petit devant  $\sqrt{\gamma_X \gamma_Y}$ , le taux se rapproche de zéro : cela signifie que si la relaxation de spin est lente à l'échelle des processus radiatifs, la luminescence ne traduit plus le fait que  $\gamma_X \neq \gamma_Y$ .

Nous percevons que c'est la relaxation du spin de l'exciton qui est capable de révéler optiquement la différence des forces d'oscillateurs au sein de la structure fine. Le fait que nous observions en photoluminescence des anisotropies de polarisation sur des boîtes quantiques sous excitation continue non-résonante est une preuve d'une relaxation efficace du spin de l'exciton.

La mesure du taux de polarisation linéaire du signal de photoluminescence sous excitation non-résonante continue nous permet d'accéder à une mesure du temps de relaxation de spin de l'exciton. En effet en introduisant :

$$R_L^{sat} = \frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y} \quad (5.2.9)$$

le taux d'anisotropie linéaire des forces d'oscillateurs et :

$$\tau_R = \frac{1}{\gamma_R} = \frac{1}{\gamma_X} + \frac{1}{\gamma_Y} \quad (5.2.10)$$

le temps moyen de recombinaison radiative au niveau de la transition fondamentale, nous pouvons réécrire :

$$\frac{R_L}{R_L^{sat}} = \frac{1}{1 + \frac{\gamma_R}{\gamma_s}} = \frac{1}{1 + \frac{\tau_s}{\tau_R}} \quad (5.2.11)$$

La mesure de  $R_L^{sat}$  peut être réalisée en se plaçant d'emblée dans une situation où la relaxation du spin est très rapide, par exemple en augmentant la température jusqu'au régime où  $R_L = R_L^{sat}$  ([28] ou figure 5.2.4).

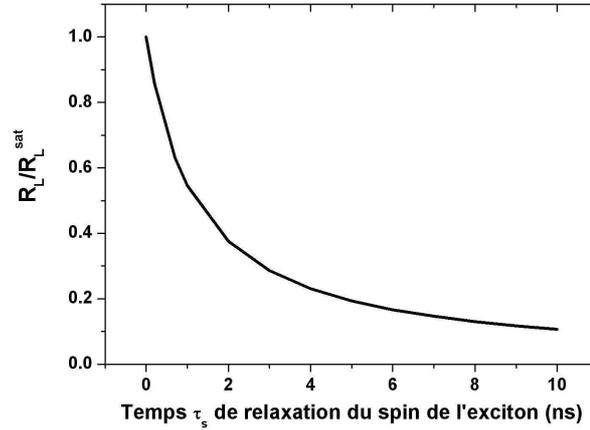


FIG. 5.2.6 – Taux  $R_L$  de polarisation linéaire de la photoluminescence, normalisé à sa valeur à saturation  $R_L^{sat}$ , en fonction du temps de relaxation de spin de l'exciton pour une boîte quantique présentant des forces d'oscillateur différentes pour les transitions  $X$  et  $Y$  et un temps radiatif moyen pour l'échantillon  $E$ ,  $\tau_R = 1.2$  ns, d'après [28]. Lorsque le spin relaxe très vite, l'anisotropie des forces d'oscillateurs est complètement révélée : le taux de polarisation vaut  $R_L^{sat}$ .

Une fois la valeur de  $R_L^{sat}$  connue, il suffit de mesurer le taux de polarisation linéaire du signal de photoluminescence non-résonante et d'appliquer ensuite la correspondance donnée par la courbe de la figure 5.2.6 pour obtenir une mesure du temps de relaxation de spin de l'exciton.

Voici donc une nouvelle technique pour explorer la dynamique de spin de l'exciton. Ce n'est pas une technique d'orientation optique et elle ne nécessite que la mesure du taux de polarisation de la luminescence sur une boîte présentant une anisotropie des forces d'oscillateur des transitions associées aux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de la structure fine.

### 5.2.3 Evolution en température de la relaxation du spin de l'exciton

L'augmentation en fonction de la température du taux de polarisation linéaire de la luminescence de l'ensemble de boîtes de l'échantillon E est bien ajustée par l'équation 5.2.8 si nous prenons pour  $R_L^{sat}$  la valeur de 9% mesurée sur l'échantillon E à 300 K (chapitre IV figure 4.1.2) et une loi thermoactivée pour le taux de relaxation du spin de l'exciton (voir figure 5.2.4) :

$$\gamma_s(T) = \gamma_s(0) + A.e^{-\frac{E_a}{kT}} \quad (5.2.12)$$

où  $\frac{1}{\gamma_s(0)} = 2.17$  ns et où  $E_a = 45$  meV.

Notre analyse de la polarisation de la luminescence de l'ensemble de boîtes de l'échantillon E montre donc qu'à basse température (en dessous de 30 K), la dynamique de relaxation du spin de l'exciton est lente (2.17 ns) alors qu'elle s'accélère à plus haute température. De 40 à 60 K, elle passe de 1.7 ns à 180 ps. A 80K, elle s'effectue en 30 ps.

Ce seuil, entre 40 et 60 K, où apparaît une modification de la dynamique de relaxation du spin, est comparable à celui que nous avons déjà observé dans les études de largeur de raie sur boîte quantique unique. Il correspond ici à une énergie d'activation de 45 meV. Est-il lui aussi déterminé par l'entrée en jeu des modes de phonons optiques du système ?

Nous avons vu précédemment que deux des mécanismes classiques de relaxation de spin dans les semiconducteurs, les mécanismes Elliot-Yafet et Dyakonov-Perel, reposent sur l'interaction spin-orbite assistée par des événements diffusifs. A très basse température, à cause du confinement quantique dans la boîte, ces événements diffusifs entre états discrets sont gelés car les phonons acoustiques ne sont pas capables de les activer et la relaxation du spin de l'exciton est donc lente. En revanche, lorsque la température atteint environ 50 K, les phonons optiques commencent à jouer un rôle et peuvent assister des transitions des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  vers des états discrets à plus haute énergie de la boîte ou vers des états mixtes boîte-couche de mouillage, dont la densité est importante à 45 meV de la transition fondamentale (voir chapitre I figure 1.4.5). Ces transitions entraînent des changements d'orientation du spin des porteurs qui peuvent être très efficaces. Le taux de transfert de population entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de la transition fondamentale de la boîte augmente en conséquence. Tsitsishvili a mené une étude théorique quantitative de ces différents régimes de relaxation du spin de l'exciton en fonction de la température, sans tenir compte des états excitoniques mixtes boîte-couche de mouillage. Il calcule à basse température (en dessous de 30 K) une relaxation très lente à l'échelle des phénomènes radiatifs (de l'ordre de la milliseconde) [146] et à 80 K une relaxation assistée par les phonons optiques qui s'effectue en quelques dizaines de ps [147].

Cette analyse de l'action des phonons optiques reproduit bien l'évolution de

la dynamique du spin de l'exciton que nous observons en température, qui est très similaire à celle observée dans [28], à l'exception d'une petite différence dans la valeur de l'énergie d'activation, qui est de 30 meV dans [28] et 45 meV dans nos expériences sur l'échantillon E.

A cet égard, les phonons optiques jouent ici dans la dynamique du spin excitonique au niveau de la transition fondamentale un rôle très similaire à celui qu'ils jouent déjà dans les propriétés de cohérence de l'exciton : par des transitions qu'ils assistent vers d'autres états de la boîte, ils nous font sortir de l'image de l'atome artificiel isolé pour décrire la transition fondamentale. Il nous faut travailler à très basse température ( $< 45$  K) pour se rapprocher de l'image de l'atome artificiel sur lequel on peut préparer et conserver durablement un porteur dans un état de spin.

## 5.3 Etude de la relaxation du spin sur boîte unique

Les effets que nous avons observés résultent d'une moyenne sur l'ensemble des boîtes quantiques sondées de phénomènes apparaissant à l'échelle de l'objet unique. La technique d'étude de la dynamique de relaxation du spin excitonique que nous venons de mettre en place, qui consiste simplement à mesurer sous excitation continue non-résonante un taux de polarisation de la luminescence, nous permet de travailler à cette échelle. En utilisant cette technique et en réalisant des expériences de photoluminescence résolue dans le temps sur des boîtes uniques, nous mettons en évidence une relaxation rapide du spin de l'exciton à cette échelle et précisons le rôle joué par les états noirs dans cette relaxation.

### 5.3.1 Relaxation efficace du spin excitonique sur des boîtes uniques à 10 K

Les taux élevés de polarisation linéaire de la photoluminescence mesurés sur diverses boîtes uniques des échantillons A,B,C et D ont été interprétés au chapitre précédent comme résultant d'anisotropies élevées des forces d'oscillateur des transitions X et Y. Nous voyons à présent que ce n'est que partiellement vrai. Il y a, en réalité, deux conditions nécessaires à l'observation d'un taux non nul de polarisation de la photoluminescence sur une boîte quantique sous excitation non-résonante : la différence des forces d'oscillateur mais aussi une relaxation efficace du spin de l'exciton. Le fait que nous observions des taux de polarisation élevés sur certaines boîtes démontre que le spin de l'exciton relaxe vite dans ces boîtes.

Nous avons présenté au chapitre précédent une étude en température du taux de polarisation linéaire  $R_L$  de la luminescence sur un groupe de cinq boîtes uniques des échantillons A,B,C et D présentant différentes anisotropies de force d'oscillateur (voir figure 4.1.10). La boîte 3 de l'échantillon A, pour laquelle  $R_L = +82\%$  à 10K, fait partie de ce groupe. L'étude nous a montré que, à notre incertitude expérimentale près, les taux de polarisation sur les cinq boîtes sont constants en température. Ceci signifie qu'à 10 K sur ces cinq boîtes, la relaxation du spin de l'exciton est déjà assez rapide (quelques centaines de ps) pour révéler les différences de forces d'oscillateur et donner à  $R_L$  sa valeur à saturation  $R_L^{sat}$ .

Nous avons donc l'exemple de cinq boîtes uniques en zone frontière et en zone 3D sur lesquelles nous observons une dynamique de relaxation du spin de l'exciton rapide (quelques centaines de ps) même à 10K, en contraste avec les résultats obtenus par une moyenne d'ensemble sur les boîtes de l'échantillon E.

### 5.3.2 Expériences résolues dans le temps à 5 K

Nous étudions dans le temps la dynamique de photoluminescence au niveau des transitions associées à  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sur boîte unique. Ces études éclairent les mécanismes de relaxation de spin au sein de la transition fondamentale [141].

Ces expériences ont été réalisées à Grenoble en collaboration avec Christophe Couteau et Jean-Philippe Poizat.

Nous avons mené, sous excitation non-résonante au-dessus de l'énergie de la couche de mouillage à 1.55 eV, à l'aide d'un laser Titane-Saphir délivrant des impulsions de 1 ps, des expériences de photoluminescence à 5 K résolue dans le temps et en polarisation sur des boîtes uniques de l'échantillon A (zone frontière) présentant une forte anisotropie optique : l'analyse de la photoluminescence en polarisation linéaire selon X nous permet de sélectionner la transition associée à l'état  $|X\rangle$ , l'analyse en polarisation selon Y la transition associée à l'état  $|Y\rangle$ .

Nous avons étudié plus particulièrement la boîte 3 de l'échantillon A, que nous avons déjà examinée dans le détail au chapitre précédent et dont la photoluminescence est polarisée linéairement à +82 % à 10 K.

La figure 5.3.7 montre le signal de photoluminescence à 5 K sur la boîte 3, résolu dans le temps et analysé en polarisation linéaire selon les directions X et Y.

Sur cette figure, nous observons que les deux intensités de photoluminescence  $I_X(t)$  et  $I_Y(t)$ , correspondant aux configurations d'analyse en polarisation linéaire suivant X et Y, décroissent exponentiellement entre 0 et 2 ns avec le même temps caractéristique de 450 ps, ce qui est court pour des boîtes InAs pour lesquelles le temps de vie radiatif standard est de 1 ns [150]. Le rapport d'intensité  $\frac{I_X(t)}{I_Y(t)}$  est constant en fonction du temps et a la même valeur que sous excitation continue à l'HeNe.

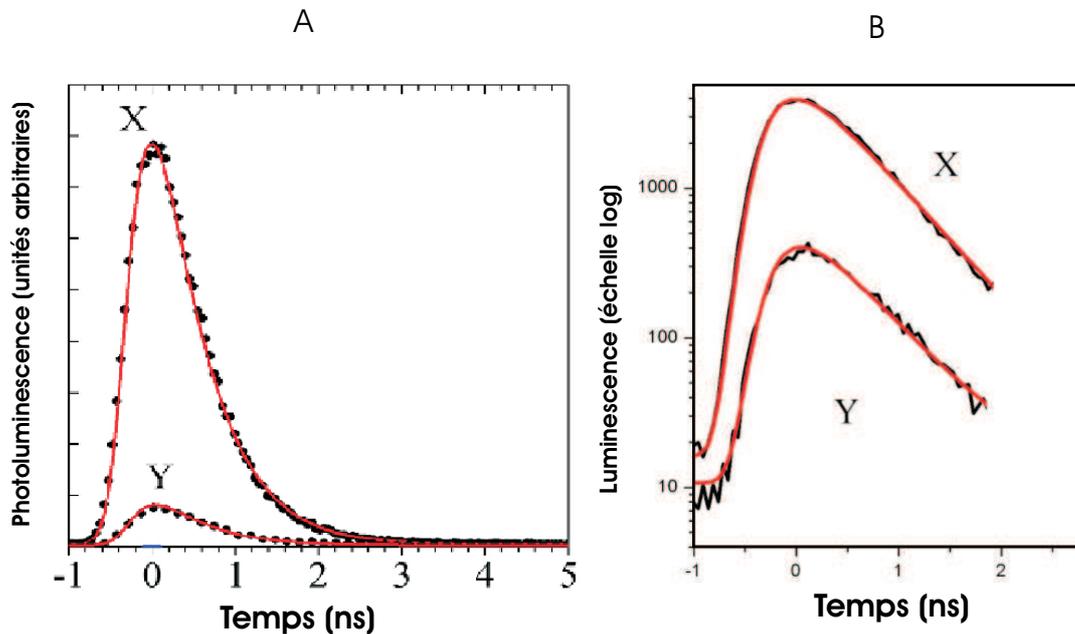


FIG. 5.3.7 – *Expérience de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation, sur la boîte 3 de l'échantillon A, sous excitation non-résonante au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage. La partie A montre le signal de photoluminescence analysé en polarisation linéaire selon X et Y ainsi qu'un accord, en trait continu, obtenu en convoluant la réponse temporelle du dispositif avec une exponentielle de temps caractéristique 450 ps. La partie B montre le même signal en échelle semi-logarithmique.*

Si l'évolution des populations  $n_X$  et  $n_Y$  des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  était déterminée uniquement par les processus radiatifs correspondant à des forces d'oscillateur  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$ , le déclin de l'intensité de photoluminescence  $I_X(t)$  analysée en polarisation linéaire selon X devrait être plus rapide, puisque la force d'oscillateur  $\gamma_X$  est plus grande.

Le fait que les deux signaux  $I_X(t)$  et  $I_Y(t)$  ont la même dynamique est une preuve que l'évolution des populations  $n_X$  et  $n_Y$  n'est pas régie que par les processus radiatifs. Il y a, en plus des processus radiatifs, un transfert de population efficace entre l'état  $|X\rangle$  et l'état  $|Y\rangle$ , c'est à dire une relaxation rapide du spin de l'exciton, qui égalise les populations de ces deux états. Cette relaxation entraîne que nous n'observons, en résolvant la photoluminescence dans le temps, que le déclin d'une population commune aux deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ .

L'identité des déclins des deux signaux  $I_X(t)$  et  $I_Y(t)$  prouve que cette égalisation des populations des deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  par la relaxation du spin de l'exciton se fait ici plus vite que les phénomènes radiatifs, c'est à dire en une centaine de picosecondes.

Nous avons obtenu les mêmes comportements résolus en temps et sommes

arrivés à la même conclusion d'une relaxation rapide du spin de l'exciton sur toutes les boîtes de l'échantillon A que nous avons étudiées (environ 10 boîtes).

### 5.3.3 Expériences résolues dans le temps en fonction de la température

Afin de comprendre plus en détail comment s'opère cette relaxation rapide du spin de l'exciton entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , nous réalisons la même expérience de photoluminescence résolue dans le temps mais à différentes températures.

#### Résultats

Nous montrons en figure 5.3.8 la photoluminescence analysée en polarisation linéaire selon X sur la même boîte quantique 3 que précédemment dans les mêmes conditions d'excitation mais en faisant cette fois varier la température entre 5 et 40 K.

A toutes les températures, le signal résolu dans le temps tracé en figure 5.3.8 se superpose à la convolution de la réponse temporelle du détecteur avec une fonction bi-exponentielle, qui possède un temps court et un temps long. A 5 K, le temps court est de 450 ps et il est difficile d'extraire une mesure du temps long. A partir de 20 K en revanche, la composante longue acquiert un poids important (voir figure 5.3.8) : les temps courts et les temps longs valent respectivement 500 ps et 6 ns à 20 K et 650 ps et 4.5 ns à 40 K.

#### Modèle

L'existence d'une dynamique bi-exponentielle ainsi que l'allongement du temps court et la diminution du temps long lorsque nous augmentons la température rappellent les résultats obtenus par Labeau dans le cadre d'expériences de photoluminescence résolue dans le temps sur des nanocristaux uniques de CdSe [151]. Cette dynamique dans les nanocristaux est le résultat d'une redistribution, activée en température, de la population des états radiatifs vers des états non-radiatifs du système. Dans le cas des boîtes quantiques, les états noirs, que nous avons introduits au chapitre IV au cours de notre description de la structure fine de la transition fondamentale, sont des états non-radiatifs. Ils sont observés à 400  $\mu\text{eV}$  des états brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  dans [94]. Nous allons les inclure dans notre modélisation.

Nous utilisons un modèle à cinq niveaux, schématisé en figure 5.3.9 : un niveau vide d'exciton  $|g\rangle$ , deux niveaux excitoniques brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  et deux niveaux excitoniques noirs  $|D_X\rangle$  et  $|D_Y\rangle$  à  $\Delta E \simeq 400 \mu\text{eV}$  en dessous des niveaux brillants. Nous considérons que seuls les phonons acoustiques résonants avec les transitions

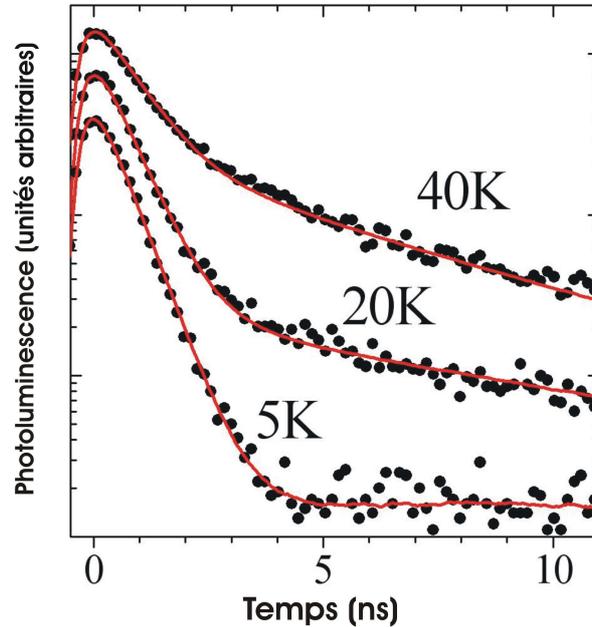


FIG. 5.3.8 – *Signal de photoluminescence résolu dans le temps et en température (échelle semi-logarithmique), sur la boîte 3 de l'échantillon A, sous excitation non-résonante au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage. Dans la dynamique biexponentielle de déclin de la photoluminescence, la composante longue acquiert un poids important lorsque la température passe de 5 à 40 K. Les lignes continues sont données par notre modélisation.*

entre un état brillant et un état noir sont responsables de la thermalisation des excitations entre les états brillants et noirs. Les taux de transition induits par ces phonons sont respectivement  $\gamma_{\downarrow} = \gamma_0(N + 1)$ , taux de transition d'un état brillant vers un état noir, et  $\gamma_{\uparrow} = \gamma_0 N$ , taux de transition d'un état noir vers un état brillant.  $N = 1/[\exp(\Delta E/k_B T) - 1]$  est la population de Bose des phonons et  $\gamma_0$  est le taux de relaxation à température nulle d'un état brillant à un état noir.  $\gamma_{\downarrow}$  est identique pour les deux états brillants, ainsi que  $\gamma_{\uparrow}$ .

Par ailleurs, le modèle inclut deux taux de recombinaison radiative  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$  des états brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  vers  $|g\rangle$ . Les mécanismes non-radiatifs sont négligés devant les mécanismes radiatifs pour les états brillants mais pas pour les états noirs : nous introduisons un taux de recombinaison non-radiative  $\gamma_D$  pour chacun des états noirs, qui dans le cadre de l'approximation dipolaire ne sont pas couplés à la lumière. Enfin, la relaxation du spin de l'exciton est modélisée par un taux de transfert de population  $\gamma_s$  entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  (voir figure 5.3.9).

Cette modélisation de la transition fondamentale est équivalente si nous ne

nous intéressons qu'au transfert entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  à une description du type de celle schématisée en partie b) de la figure 5.2.5, où nous ne considérons que deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  entre lesquels la population relaxe avec un taux  $\tilde{\gamma}_s = \gamma_s + \gamma_\downarrow$ .

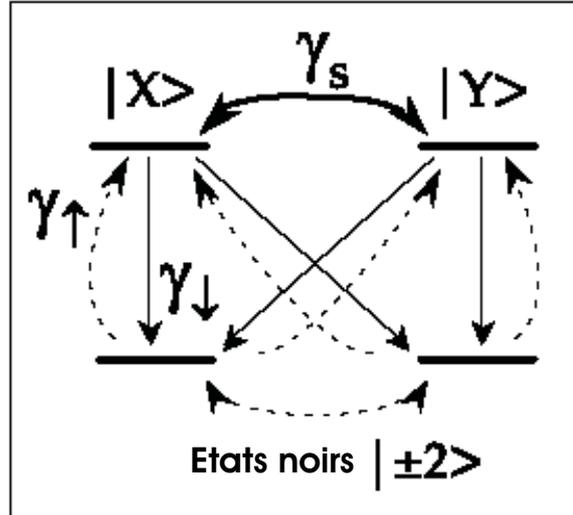


FIG. 5.3.9 – Schéma de la structure fine de l'exciton neutre fondamental dans une boîte quantique *InAs/GaAs*.

Les deux états noirs n'étant pas distingués dans notre modèle (ils ont un même taux non-radiatif  $\gamma_D$  et ils sont à la même énergie), le cas d'une relaxation de spin très efficace entre les états brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  (ie  $\gamma_s$  grand devant tous les autres  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$ ) peut se ramener à un simple modèle à trois niveaux : le vide d'exciton  $|g\rangle$ , un état brillant  $|B\rangle$  et un état noir  $|D\rangle$ . C'est le modèle qu'avait développé Labeau pour les nanocristaux [151]. Dans ce cas, si nous supposons de plus que le transfert de population entre l'état noir et l'état brillant est efficace, ie si  $\gamma_0 \gg \gamma_B \gg \gamma_D$ , nous pouvons obtenir des expressions analytiques pour l'intensité de signal de photoluminescence après une excitation pulsée ayant peuplé les deux états noir et brillant avec les populations initiales respectives  $n_B(0)$  et  $n_D(0)$  égales et telles que  $(n_B(0) + n_D(0)) = 1$ . Cette intensité s'écrit [151] :

$$I(t) = \frac{\gamma_B N}{1 + 2N} \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) + \gamma_B \left[n_B - \frac{N}{1 + 2N}\right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_l}\right) \quad (5.3.13)$$

où  $\tau_c$  et  $\tau_l$  sont respectivement un temps court et un temps long donnés par :

$$\tau_c^{-1} = \gamma_0(1 + 2N) \quad \text{et} \quad \tau_l^{-1} = \frac{\gamma_B + \gamma_D}{2} - \frac{\gamma_B - \gamma_D}{2} \tanh\left(\frac{\Delta E}{2k_B T}\right) \quad (5.3.14)$$

Nous voyons, à partir de cet exemple, que la présence des états noirs entraîne l'apparition de dynamiques bi-exponentielles.

Notre modèle complet comprenant 5 paramètres ( $\gamma_X$ ,  $\gamma_Y$ ,  $\gamma_0$ ,  $\Delta E$  et  $\gamma_D$ ), sa solution analytique a une expression plus complexe et nous utilisons plutôt une résolution numérique du modèle pour reproduire nos résultats expérimentaux.

Nous définissons une procédure de détermination des ces 5 paramètres à partir des données expérimentales : en premier lieu, nous cherchons à ajuster, à l'aide d'une exponentielle et d'un fond, le déclin temporel de la photoluminescence à 5 K analysée en polarisation linéaire selon X ou Y et déterminons ainsi le taux de recombinaison radiative moyen  $\frac{\gamma_X + \gamma_Y}{2}$ . La mesure du taux de polarisation linéaire  $R_L$  de la photoluminescence sous excitation non-résonante permet ensuite d'accéder au rapport  $\frac{\gamma_Y}{\gamma_X}$  (puisque  $R_L$  est constant en température, sa valeur révèle bien l'anisotropie des forces d'oscillateur). A ce stade, nous obtenons  $\gamma_X$  et  $\gamma_Y$ .

Il nous reste ensuite à déterminer  $\gamma_0$ ,  $\Delta E$  et  $\gamma_D$ . Nous utilisons à cet effet les données en température. En fixant au départ une valeur pour  $\Delta E$  et pour  $\gamma_D$  (nous considérons a priori que le temps de vie des états noirs est de quelques nanosecondes), nous cherchons, à l'aide de différentes valeurs de  $\gamma_0$ , à reproduire l'évolution en température, entre 5 et 40 K, du signal de photoluminescence résolue dans le temps, en tenant compte du poids respectif des composantes courte et longue. En jouant d'abord un jeu de va-et-vient entre  $\Delta E$  et  $\gamma_0$  pour ajuster une première fois cette évolution en température, nous convergions vers un couple de valeurs pour ces deux paramètres. Finalement, nous faisons varier  $\gamma_D$  pour mieux reproduire les données obtenues et procédons ensuite par ajustements successifs des trois paramètres. Une telle procédure nous permet d'obtenir des valeurs pour  $\gamma_0$ ,  $\Delta E$  et  $\gamma_D$ .

## Discussion

Notre extension du modèle de Labeau, prenant en compte la redistribution activée en température de population vers les états noirs et la relaxation du spin de l'exciton entre les deux états brillants, explique bien la présence d'une dynamique bi-exponentielle en augmentant la température. D'après l'équation 5.3.14, le temps court augmente en augmentant la température alors que le temps long diminue.

Notre modélisation à 5 niveaux nous permet d'obtenir l'excellent accord avec l'expérience présenté en figure 5.3.8 (traits pleins), en utilisant les paramètres suivants :  $\frac{1}{\gamma_X} = 0.24\text{ns}$ ,  $\frac{1}{\gamma_Y} = 2.4\text{ns}$ ,  $\Delta E = 290 \mu\text{eV}$  pour le splitting états noirs-états brillants,  $\frac{1}{\gamma_D} = 8.5 \text{ ns}$  pour le temps de vie des états noirs et  $\frac{1}{\gamma_s} < 100 \text{ ps}$  pour le temps de relaxation du spin de l'exciton.

Le fait que la relaxation du spin soit si rapide explique l'observation d'un taux de polarisation linéaire de la photoluminescence constant au cours du temps à 5 K sur la figure 5.3.7. De plus, à cette température, l'influence des états noirs est faible puisque la dynamique de déclin de la photoluminescence reste quasi-exponentielle avec un temps de déclin  $\tau$  qui correspond à la moyenne des forces

d'oscillateur des transitions X et Y :  $\frac{1}{\tau} = \frac{(\gamma_X + \gamma_Y)}{2}$ .

L'évolution des données en température, de 5 à 40 K, nous permet par ailleurs de déduire de notre modèle le temps  $\frac{1}{\gamma_0}$  de relaxation à température nulle des états brillants vers les états noirs. Nous obtenons  $\frac{1}{\gamma_0} = 440$  ns, ce qui confirme que, à température nulle, le transfert de population des états brillants vers les états noirs joue, pour la boîte 3 de l'échantillon A, un rôle mineur par rapport au transfert direct entre les états brillants (quelques centaines de picosecondes ici).

C'est une tendance que nous avons observée sur toutes les boîtes sur lesquelles nous avons réalisé l'expérience (une dizaine de boîtes sur l'échantillon A) : la boîte qui exhibe le taux de transfert vers les états noirs le plus important à température nulle ne culmine qu'avec la valeur  $\frac{1}{\gamma_0} = 30$  ns. Dans ce cas le temps de descente vers les états noirs est de  $\frac{1}{\gamma_1} = 13$  ns à 5 K et  $\frac{1}{\gamma_1} = 2$  ns à 40 K, c'est à dire beaucoup plus lent que la dynamique de relaxation directe entre états brillants. Ces résultats sont corroborés par les études réalisées récemment par le groupe de Richard Warburton, qui montrent un temps de passage long des états brillants vers les états noirs, toujours supérieur à 1 ns [152]. Nous retiendrons donc que dans notre situation expérimentale, c'est le transfert direct entre états brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  qui prime sur le passage par les états noirs dans la relaxation du spin de l'exciton.

Notons ici que le fait qu'il existe des états noirs dans la structure fine de la transition fondamentale, ce que notre expérience et notre modélisation démontrent, est une preuve que nous ne travaillons pas avec des excitons chargés mais bien avec des excitons neutres. En effet dans le cas d'un exciton chargé, avec un électron résident par exemple ( $X^-$ ), il n'y a que deux façons de créer une paire électron-trou : avec le trou up ou avec le trou down. La structure fine de l'exciton chargé se compose donc de deux états brillants  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  dégénérés et il n'y a pas d'états excitoniques noirs dans ce cas. Ici, c'est la recombinaison radiative d'excitons neutres que nous observons sur les boîtes uniques de l'échantillon A.

Par ailleurs, précisons que nous avons, dans notre modélisation, négligé l'existence de canaux non-radiatifs entre 0 et 40 K en nous basant sur des résultats bien établis sur les boîtes quantiques *InAs/GaAs* [148, 149] et sur l'observation d'une intensité de signal constante jusqu'à 100 K sur l'échantillon E. Le ralentissement, lors d'une augmentation de température, de la dynamique globale de photoluminescence dans les expériences sur boîte unique que nous présentons nous permet de confirmer l'absence de ces canaux, qui conduirait au contraire à une accélération de cette dynamique.

## Conclusion

Finalement, nos résultats, sur boîte unique, de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation montrent une relaxation du spin de l'exciton sous excitation non-résonante qui se fait en une centaine de picosecondes à 10 K,

contrairement aux temps de relaxation lents (de l'ordre de quelques ns) que nous avons observés sur l'ensemble de boîtes de l'échantillon E à la même température. En augmentant la température, nous activons un transfert de population vers les états noirs de la structure fine. Ce transfert, dans les boîtes que nous avons étudiées, participe de manière marginale à la relaxation longitudinale du spin de l'exciton entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  mais détermine en revanche la dynamique de relaxation de la population excitonique.

## 5.4 Excitation quasi-résonante d'un ensemble de boîtes

Sur différentes boîtes uniques en zone frontière sur l'échantillon A, nous avons observé, sous excitation non-résonante, une dynamique rapide (de l'ordre de 100 ps) de la relaxation du spin excitonique à 10 K. En zone 3D, sur d'autres boîtes uniques présentant une anisotropie des forces d'oscillateurs de  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , nous avons vu que la relaxation du spin de l'exciton s'opère également en quelques centaines de picosecondes à 10 K (voir paragraphe 5.3.1). Finalement, de manière générale, sur une quinzaine de boîtes uniques anisotropes, que nous rencontrons principalement en zone frontière, nous avons toujours observé à 10 K une relaxation rapide du spin de l'exciton.

En revanche, sur un ensemble dense de boîtes (zone 3D) de l'échantillon E, nos résultats montrent, toujours sous excitation non-résonante, une dynamique lente de cette relaxation à la même température (plusieurs nanosecondes).

Dans le chapitre précédent, nous avons montré, par l'étude des propriétés d'anisotropie en polarisation de la photoluminescence, qu'il existe une différence de nature entre les boîtes en zone frontière et en zone 3D. A ce stade, nos résultats suggèrent que cette différence se révèle également dans la dynamique de relaxation du spin de l'exciton.

Afin de faire un lien entre les deux types de dynamique que nous avons rencontrés (rapide en zone frontière et lente en zone 3D) et afin de comprendre quels paramètres peuvent influencer cette dynamique, nous avons mené des expériences complémentaires sur un ensemble de boîtes de l'échantillon E.

Nous avons jusqu'à présent étudié la dynamique du spin de l'exciton dans des boîtes quantiques en réalisant une excitation optique des boîtes largement non-résonante, toujours au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage. Dans le cas d'une telle excitation, la mémoire de la polarisation du laser exciteur est perdue dans le processus de luminescence : nous ne pouvons pas orienter optiquement les porteurs dans les états qui participent à la luminescence.

Nous allons à présent nous rapprocher des conditions de l'excitation strictement résonante et réaliser une excitation quasi-résonante de la luminescence sur

l'échantillon E d'ensemble de boîtes. Cette nouvelle excitation nous permet de réaliser une orientation optique des porteurs et nos résultats indiquent une modification sur deux ordres de grandeur de la dynamique de relaxation du spin de l'exciton, prouvant que l'orientation du spin excitonique peut être perturbée par l'environnement de la boîte, dont il est possible de modifier le degré d'activation en jouant sur les conditions d'excitation.

### 5.4.1 Orientation optique sous excitation quasi-résonante

#### Dépendance de $R_L$ en polarisation de l'excitation

Nous travaillons à 10 K sur un ensemble de boîtes quantiques de l'échantillon E. En excitant ces boîtes sous l'énergie du continuum quasi-2D de la couche de mouillage, le spectre de photoluminescence n'a plus l'allure de la figure 5.2.3 : il devient fortement structuré spectralement, comme nous le voyons sur la figure 5.4.10 dans le cas d'une excitation à 1.38 eV. Sur cette figure, nous distinguons dans le spectre de photoluminescence trois maxima d'intensité dont le niveau diminue avec l'énergie de détection. Ces maxima sont distants de 32, 64 et 96 meV de l'énergie d'excitation.

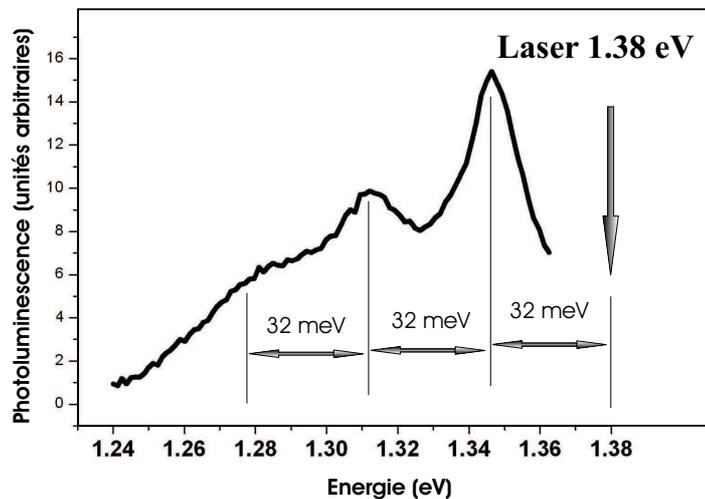


FIG. 5.4.10 – Photoluminescence de l'ensemble de boîtes sous excitation quasi-résonante à 1.38 eV à 10 K. Ce spectre fait apparaître trois répliques phonon optique régulièrement espacées de 32 meV.

Dans ce régime d'excitation, que nous appellerons régime d'excitation quasi-résonant, nous avons effectué une étude du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence en fonction de la direction de polarisation linéaire du laser, repérée par l'angle  $\theta$  par rapport à l'axe X. Cette étude est menée à 10 K

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>181</sup>

en plaçant le laser à 1.41 eV et en mesurant le taux de polarisation de la photoluminescence émise à plus basse énergie. Nos résultats sont reportés sur la figure 5.4.11.

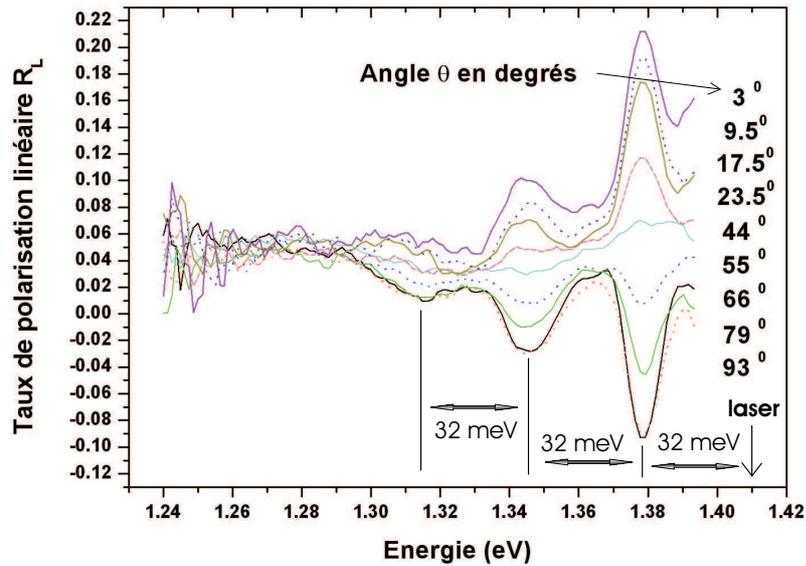


FIG. 5.4.11 – Taux de polarisation linéaire de la photoluminescence de la distribution inhomogène de boîtes de l'échantillon  $E$  en fonction de l'angle  $\theta$  de la polarisation linéaire du laser, lors d'une excitation sélective à 1.41 eV et à 10 K.

Sur cette figure, nous voyons à  $\theta = 3$  degrés que le taux de polarisation dépend très fortement de l'énergie de détection. Il présente à nouveau trois maxima, à 32, 64 et 96 meV de l'énergie du laser. Sur ces maxima, le taux de polarisation part d'une valeur positive à  $\theta = 3$  degrés et décroît jusqu'à une valeur négative à  $\theta = 93$  degrés. Le fait que le taux de polarisation de la photoluminescence varie avec l'angle  $\theta$  est une signature d'une mémoire de la polarisation du laser. Contrairement au cas de l'excitation au dessus de la couche de mouillage, l'excitation quasi-résonante permet de créer des porteurs dans les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  avec des taux de création  $G_X$  et  $G_Y$  différents. Cela est dû au fait que la relaxation non-radiative des porteurs photocréés jusqu'aux états qui luminescent se produit sur une plage d'énergie plus petite et parmi des états qui sont en densité plus faible puisque ce sont les états discrets des boîtes et les états du continuum boîte-couche de mouillage : il en résulte une certaine orientation optique par l'excitation.

### Modélisation de l'excitation quasi-résonante

Nous pouvons analyser ce comportement de mémoire de la polarisation à l'aide d'un modèle à plusieurs niveaux, schématisé en figure 5.4.12.

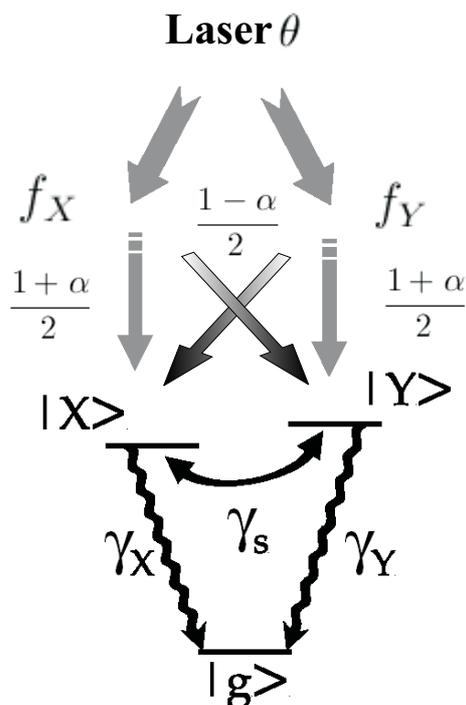


FIG. 5.4.12 – Modélisation de la photoluminescence d'une boîte quantique à température nulle dans le cas d'une excitation sélective proche de la résonance où la mémoire de la polarisation de l'excitation est partiellement préservée. Le paramètre  $\alpha$  caractérise cette mémoire.

Il prend en compte les phénomènes de mémoire de la polarisation de l'excitation, qui engendrent suivant les situations des taux de photo-crédation  $G_X$  et  $G_Y$  différents sur les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , par l'introduction d'un coefficient  $\alpha$  que nous appellerons coefficient de mémoire de la polarisation du laser à l'aide duquel nous exprimons les taux de photo-crédation  $G_X$  et  $G_Y$  de la façon suivante :

$$G_X = P_0 \cos^2 \theta f_X \left( \frac{1+\alpha}{2} \right) + P_0 \sin^2 \theta f_Y \left( \frac{1-\alpha}{2} \right) \quad (5.4.15)$$

$$G_Y = P_0 \cos^2 \theta f_X \left( \frac{1-\alpha}{2} \right) + P_0 \sin^2 \theta f_Y \left( \frac{1+\alpha}{2} \right) \quad (5.4.16)$$

où  $P_0$  est la puissance d'excitation,  $\theta$  est l'angle de la polarisation linéaire du laser par rapport à X et où nous appelons  $f_X$  et  $f_Y$  les facteurs représentant les taux d'absorption selon les polarisations linéaires X et Y à l'énergie du laser. Le cas

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES 183

$\alpha = 1$  correspond à une mémoire totale de la polarisation du laser. Le cas  $\alpha = 0$  correspond à une perte totale de la mémoire de polarisation du laser.

Nous introduisons le taux d'anisotropie  $\eta$  de photocréation sur les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , qui s'exprime en fonction de  $\alpha$  et de  $f_X$  et  $f_Y$ .

$$\eta(\theta) = (G_X - G_Y)/(G_X + G_Y) = \alpha \frac{\cos^2 \theta f_X - \sin^2 \theta f_Y}{\cos^2 \theta f_X + \sin^2 \theta f_Y} = \alpha \frac{\delta + \cos 2\theta}{1 + \delta \cos 2\theta} \quad (5.4.17)$$

où

$$\delta = (f_X - f_Y)/(f_X + f_Y) \quad (5.4.18)$$

est le taux d'anisotropie d'absorption à l'énergie de l'excitation.

Lorsque  $\theta = 0$ , c'est à dire lorsque l'excitation est polarisée linéairement selon X,  $\eta = \alpha$  et lorsque  $\theta = \frac{\pi}{2}$ , c'est à dire lorsque le laser excitateur est polarisé suivant Y,  $\eta = -\alpha$ . Dans ces deux cas, l'anisotropie d'absorption disparaît des taux de photocréation, il ne reste que le facteur de mémoire de la polarisation.

A présent que nous avons défini les paramètres permettant de rendre compte de la mémoire de l'orientation optique de l'excitation, nous pouvons réécrire les équations aux populations pour les états brillants dans le cas où  $G_X \neq G_Y$ .

Le système s'écrit à présent :

$$\frac{dn_X}{dt} = G_X - (\gamma_X + \gamma_s)n_X + \gamma_s n_Y \quad \frac{dn_Y}{dt} = G_Y - (\gamma_Y + \gamma_s)n_Y + \gamma_s n_X \quad (5.4.19)$$

et admet pour solutions en régime permanent :

$$n_X = \frac{G_X(\gamma_Y + \gamma_s) + G_Y\gamma_s}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad n_Y = \frac{G_Y(\gamma_X + \gamma_s) + G_X\gamma_s}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad (5.4.20)$$

Les intensités de photoluminescence polarisée linéairement selon X et Y s'écrivent alors :

$$I_X = \gamma_X n_X = \frac{\gamma_X G_X(\gamma_Y + \gamma_s) + G_Y\gamma_s}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad I_Y = \gamma_Y n_Y = \frac{\gamma_Y G_Y(\gamma_X + \gamma_s) + G_X\gamma_s}{(\gamma_X + \gamma_s)(\gamma_Y + \gamma_s) - \gamma_s^2} \quad (5.4.21)$$

d'où une expression du taux de polarisation linéaire de la luminescence :

$$R_L(\theta) = \frac{I_X - I_Y}{I_X + I_Y} = \frac{\gamma_X - \gamma_Y + \eta(\theta) \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} = \frac{R_L^{sat} + \eta(\theta) \frac{\gamma_R}{\gamma_s}}{1 + \frac{\gamma_R}{\gamma_s}} \quad (5.4.22)$$

qui ne diffère de l'expression dans le cas d'une mémoire de polarisation de l'excitation nulle (équation 5.2.11) que d'un terme au numérateur  $\eta(\theta) \frac{\gamma_R}{\gamma_s}$  impliquant la dynamique de spin de l'exciton via  $\gamma_s$  et l'anisotropie de photocréation sur les états brillants via  $\eta(\theta)$ .

Nous constatons ici encore que si la dynamique de relaxation de spin de l'exciton est beaucoup plus lente que la recombinaison radiative des populations des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , c'est à dire si  $\gamma_R \gg \gamma_s$  (cas 1), le taux de polarisation observé est égal à  $\eta(\theta)$ , ce qui ne révèle pas le fait qu'éventuellement  $\gamma_X \neq \gamma_Y$ . Il faut toujours une relaxation efficace du spin de l'exciton pour observer dans le taux de polarisation de la luminescence la différence de force d'oscillateur entre les transitions X et Y.

Plus précisément, lorsque  $\gamma_R \ll \gamma_s$  (cas 2),  $R_L = R_L^{sat}$  et c'est la différence des forces d'oscillateurs qui détermine entièrement le taux de polarisation linéaire. En revanche, lorsque  $\gamma_R \simeq \gamma_s$  (cas 3),  $R_L \simeq R_L^{sat} + \eta(\theta)$  et le taux de polarisation linéaire est donné à la fois par la différence des forces d'oscillateurs et par l'orientation optique traduite par  $\eta(\theta)$ .

Nous montrons, en haut de la figure 5.4.13, l'allure de la dépendance de  $R_L$  avec l'angle  $\theta$  donnée par notre modélisation pour une boîte anisotrope dans le cas 3 ( $\gamma_s \simeq \gamma_R$ ), et ce pour trois valeurs de la mémoire de la polarisation  $\alpha$  du laser. Le cas  $\alpha = 0$  (à droite sur la figure) décrit une excitation largement non-résonante, où la mémoire de polarisation du laser est totalement perdue. Dans cette situation,  $\eta(\theta) = 0$  d'après l'équation 5.4.17 et  $R_L$  ne dépend pas de  $\theta$ . La valeur  $\alpha = 0.5$  (à gauche sur la figure) correspond au cas d'une excitation plus proche de la résonance, où l'on a réussi à orienter optiquement l'exciton dans la boîte avec un taux de 50%. Dans cette situation,  $R_L$  dépend de  $\theta$ , d'après les équations 5.4.17 et 5.4.22, change de signe lorsque  $\theta$  varie de 0 à  $\frac{\pi}{2}$ . Nous observons cependant que  $R_L(\theta = \frac{\pi}{2}) \neq R_L(\theta = 0)$ . Le cas  $\alpha = 0.15$  (au milieu sur la figure) est un cas intermédiaire entre les deux autres.

### Accord du modèle avec nos résultats

Nous montrons en bas de la figure 5.4.13 les résultats expérimentaux concernant le taux de polarisation linéaire de la photoluminescence en fonction de  $\theta$  que nous avons obtenus sur la première structure à 32 meV en excitation quasi-résonante à 1.41 eV à 10 K (voir figure 5.4.11). Le fit donné par notre modèle (en ligne continue sur la courbe), reproduit très bien l'évolution en angle, en prenant  $\alpha = 0.44$  sur cette réplique, un temps de vie radiatif moyen de 1.2 ns (déduit d'expériences de photoluminescence résolue dans le temps sur le même échantillon [31]), un taux d'anisotropie d'absorption de l'excitation  $\delta = 0.001$ , un taux de polarisation linéaire des forces d'oscillateur  $R_L^{sat} = 9\%$  et un temps de relaxation de spin de 960 ps. Le fait que les valeurs en  $\theta = 0$  et  $\theta = \frac{\pi}{2}$  n'ont pas la même magnitude prouve deux choses : la relaxation du spin de l'exciton est non nulle et les forces d'oscillateur X et Y sont différentes.

Notre modèle décrit correctement les phénomènes de mémoire de la polarisation de l'excitation dans le cas de l'excitation quasi-résonante et nous allons pouvoir l'utiliser pour étudier quantitativement la dynamique de spin dans ce

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>185</sup>

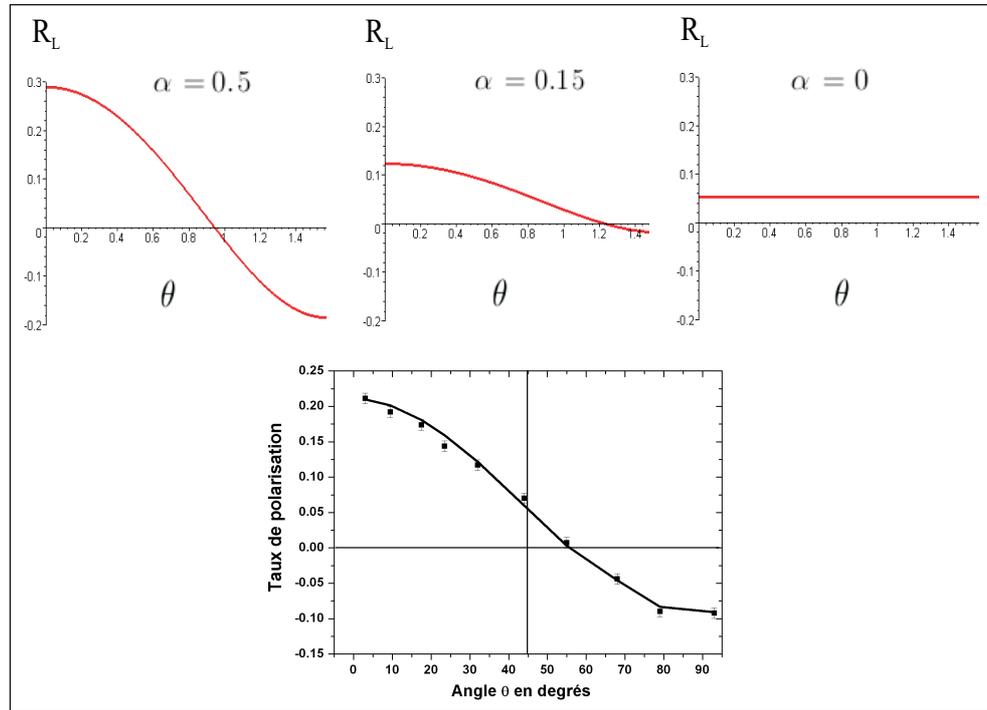


FIG. 5.4.13 – En haut, taux de polarisation linéaire  $R_L$  en fonction de  $\theta$  pour une boîte quantique présentant une anisotropie de forces d'oscillateur de 10%, un temps de relaxation du spin de l'exciton de 500 ps, deux fois plus court que le temps radiatif moyen des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , qui est de 1 ns. Les trois exemples correspondent de gauche à droite à  $\alpha = 0.5$  (forte mémoire de la polarisation du laser),  $\alpha = 0.15$  et  $\alpha = 0$  (pas de mémoire de la polarisation du laser). En bas, taux de polarisation linéaire  $R_L$  en fonction de  $\theta$  de la photoluminescence à 10K au niveau de la première réplique phonon optique sous excitation quasi-résonante à 1.41 eV. La ligne continue est un accord obtenu à l'aide de notre modèle.

régime d'excitation.

#### 5.4.2 Etude à 10 K en fonction de l'énergie d'excitation

Nous allons étudier en premier lieu la dynamique de relaxation de spin à 10 K sous excitation quasi-résonante en fonction de l'énergie d'excitation. Cette étude nous montre qu'il est possible de modifier fortement cette dynamique en jouant sur les conditions d'excitation. Par ailleurs cette modification apparaît dépendre de la classe de boîtes que nous étudions au sein de la distribution inhomogène de l'échantillon E.

### Spectres de photoluminescence en excitation quasi-résonante à 10 K

Nous effectuons des expériences de photoluminescence à 10 K sur l'échantillon E dans une configuration d'excitation quasi-résonante en faisant varier la longueur d'onde du laser excitateur par pas de 10 nm de 860 à 960 nm (1.44 à 1.29 eV), afin de balayer spectralement toute la distribution inhomogène de boîtes. Nous faisons ensuite varier l'angle  $\theta$  de polarisation linéaire du laser excitateur et mesurons le taux de polarisation linéaire de la photoluminescence  $R_L$  en fonction de  $\theta$ . En excitation quasi-résonante, nous parvenons à filtrer correctement le signal du laser réfléchi sur l'échantillon avec une sélectivité spectrale de 13 meV : nous pouvons détecter la luminescence 13 meV en dessous de l'énergie du laser sans être gêné par lui.

Nous montrons en figure 5.4.14 les spectres de photoluminescence obtenus pour les différentes énergies d'excitation en excitant avec un laser polarisé linéairement selon X et en analysant en polarisation linéaire selon X.

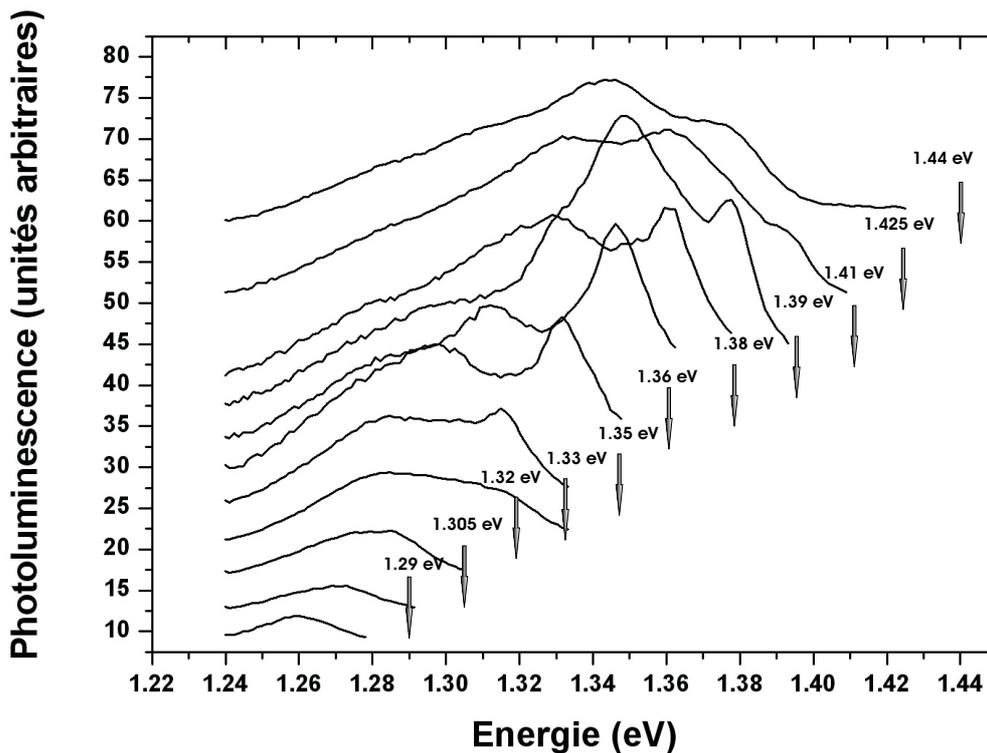


FIG. 5.4.14 – Spectres de photoluminescence en excitation quasi-résonante à 10 K sur l'échantillon E pour différentes énergies du laser excitateur.

Ces spectres de luminescence sont souvent structurés, faisant apparaître pour

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES 187

plusieurs énergies d'excitation trois maxima d'intensité situés respectivement à 32, 64 et 96 meV en dessous du laser. La structuration est d'autant plus marquée que nous excitons haut en énergie dans la distribution de boîtes. En excitant à 1.32 eV et à plus basse énergie, c'est à dire en dessous du centre de la distribution qui est à 1.35 eV, la structuration des spectres disparaît.

Le fait que la séparation en énergie de 32 meV entre les maxima d'intensité soit si régulière et indépendante de l'énergie du laser nous invite à les interpréter comme des répliques associées à des processus de photoluminescence impliquant les phonons optiques du système.

#### Analyse du temps de relaxation du spin de l'exciton

A ce stade nous définissons une méthode pour extraire de nos mesures de taux de polarisation de la photoluminescence en excitation quasi-résonante des valeurs du temps de relaxation de spin de l'exciton.

Premièrement, nous avons vu que nous pouvons connaître l'anisotropie des forces d'oscillateur sur la distribution inhomogène de boîtes en travaillant en excitation non-résonante au dessus de l'énergie de luminescence de la couche de mouillage et en nous plaçant à température assez élevée ( $\geq 70$  K) pour avoir activé complètement la relaxation du spin excitonique. Dans ce régime, nous avons montré que le taux de polarisation de la luminescence est maximal et égal au taux d'anisotropie des forces d'oscillateurs  $R_L^{sat} = \frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y}$ .

Ensuite à partir des mesures de  $R_L$  en fonction de  $\theta$  (figure 5.4.22) en excitation quasi-résonante et puisque d'après l'équation 5.4.22 :

$$R_L(0) = \frac{\gamma_X - \gamma_Y + \alpha \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} \quad \text{et} \quad R_L\left(\frac{\pi}{2}\right) = \frac{\gamma_X - \gamma_Y - \alpha \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} \quad (5.4.23)$$

il suffit de former la demi-somme :

$$\frac{1}{2}(R_L(0) + R_L\left(\frac{\pi}{2}\right)) = \frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} \quad (5.4.24)$$

pour faire disparaître les effets de l'orientation optique générée par l'excitation quasi-résonante et retrouver une expression pour le taux de polarisation de la luminescence qui est celle que nous avons dans le cas de l'excitation largement non-résonante (cf équation 5.2.8). Dans toutes les conditions d'excitation et les températures que nous avons explorées en étudiant l'échantillon E, cette demi-somme est toujours restée comprise entre 0 et  $R_L^{sat} = 9$  %, en conformité avec les prévisions du modèle. A partir de cette demi-somme, comme précédemment dans le cas de l'excitation largement non-résonante, nous avons accès au temps de relaxation de spin de l'exciton, puisque nous connaissons le temps de vie radiatif sur cet échantillon d'après [31].

Nous reproduisons en figure 5.4.15 une représentation planaire des temps de relaxation de spin de l'exciton obtenus par cette méthode pour les différentes boîtes de la distribution inhomogène de l'échantillon E à partir d'une série de 11 spectres correspondant aux 11 configurations d'excitation quasi-résonante explorées. Cette représentation contient 10 colonnes, qui correspondent chacune à une régression linéaire entre deux valeurs adjacentes d'énergie d'excitation. Nous pouvons y lire en abscisse la valeur de l'énergie d'excitation (en continu grâce à la procédure de régression linéaire), et en ordonnée la valeur de l'énergie de détection. En z, nous avons représenté la valeur du temps de relaxation de spin à l'aide de nuances de gris : plus sombre est le gris et plus court est le temps de relaxation. Le noir correspond à un temps de 100 ps alors que le blanc représente un temps de 60 ns.

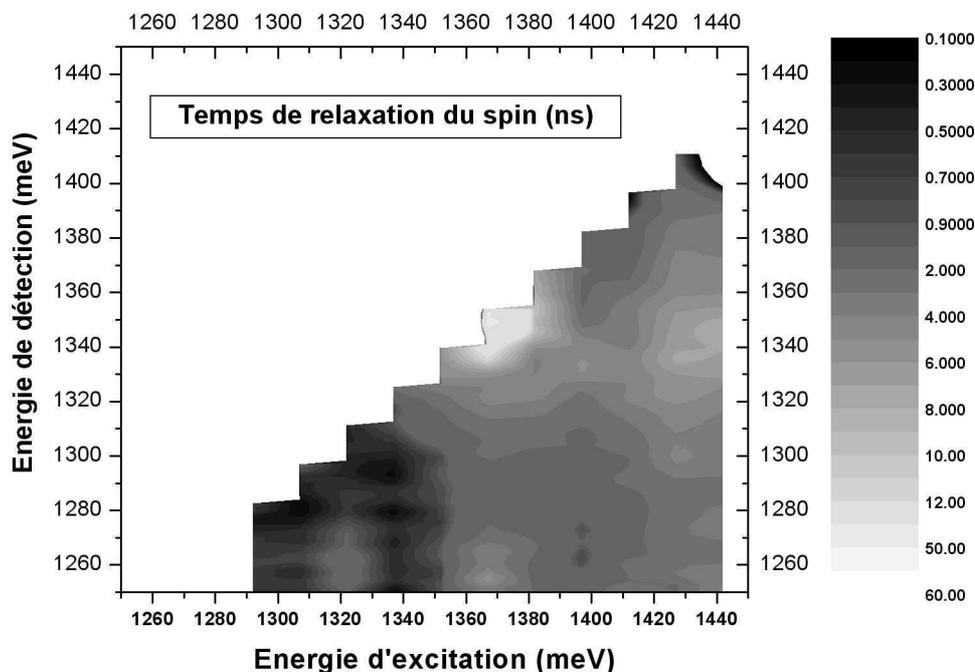


FIG. 5.4.15 – Temps de relaxation de spin à 10 K au sein de la distribution inhomogène de boîtes sous différentes conditions d'excitation quasi-résonante.

A la lecture de cette figure, une première constatation s'impose : le temps de relaxation du spin de l'exciton présente d'énormes variations, d'une quarantaine de nanosecondes pour les temps les plus longs à quelques centaines de picosecondes pour les plus courts. La valeur de ce temps dépend des conditions d'excitation mais aussi des classes de boîtes quantiques sondées.

Dans le cas d'une excitation à 1.44 eV, le temps de relaxation de spin moyen sur l'ensemble de la distribution est de 5 ns.

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES 189

Pour les boîtes du milieu de distribution, qui émettent dans une fenêtre spectrale de 15 meV de large centrée à 1.35 eV, la relaxation est assez lente quelle que soit l'excitation : elle peut atteindre 40 ns dans le cas d'une excitation quasi-résonante à l'aide d'une réplique à un phonon LO (excitation à 1.38 eV) et ne descend pas à moins de 3 ns, valeur qui apparait dans le cas de l'excitation quasi-résonante à l'aide d'une réplique à deux phonons LO (excitation à 1.41 eV). Dans le cas d'une excitation à 1.44 eV, ces boîtes voient leur spin excitonique relaxer en 7 ns (voir figure 5.4.16 B)).

Il en va très différemment des boîtes en bord de distribution, que ce soit du côté haute énergie ou du côté basse énergie.

Les boîtes du côté haute énergie (fenêtre d'émission de 15 meV centrée à 1.38 eV) ont leur dynamique la plus lente pour une excitation non-résonante à 1.44 eV, leur spin excitonique relaxant alors en un temps moyen de 4 ns. En revanche, pour une excitation plus quasi-résonante, leur dynamique a plutôt tendance à s'accélérer : les temps de relaxation observés varient de 1 à 2 ns (voir figure 5.4.16 A)). Les boîtes du côté basse énergie (fenêtre d'émission de 15 meV centrée à 1.30 eV) réagissent dans le même sens à une excitation plus quasi-résonante mais de manière beaucoup plus marquée : d'un temps moyen de relaxation de spin de 4 ns en excitation non-résonante à 1.44 eV, elles passent sous excitation quasi-résonante à des dynamiques beaucoup plus rapides qui varient de 2.5 ns pour une excitation à 1.41 eV à quelque 400 ps lorsque l'excitation est très proche de la résonance, à 1.32 eV (voir figure 5.4.16 C)).

#### Analyse de la mémoire de polarisation de l'excitation

En utilisant l'équation 5.4.23, nous pouvons également extraire de nos données le facteur  $\alpha$  de mémoire de la polarisation de l'excitation puisque :

$$\frac{1}{2}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2})) = \frac{2\alpha \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}}{\gamma_X + \gamma_Y + \frac{\gamma_X \gamma_Y}{\gamma_s}} \quad (5.4.25)$$

et

$$\alpha = \frac{1}{4}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2})) \cdot (1 + \frac{\gamma_s}{\gamma_R}) \quad (5.4.26)$$

$\alpha$  peut s'exprimer uniquement en fonction de mesures expérimentales de taux de polarisation de la photoluminescence :

$$\alpha = \frac{1}{4} \cdot (R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2})) \cdot (1 + \frac{\frac{1}{2}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2}))}{[R_L^{sat} - \frac{1}{2}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2}))]}) \quad (5.4.27)$$

Nous traçons en figure 5.4.17 une représentation planaire de ce facteur  $\alpha$  en fonction des classes de boîtes et des conditions d'excitation. Cette représentation est à nouveau issue des 11 configurations d'excitation quasi-résonante représentées

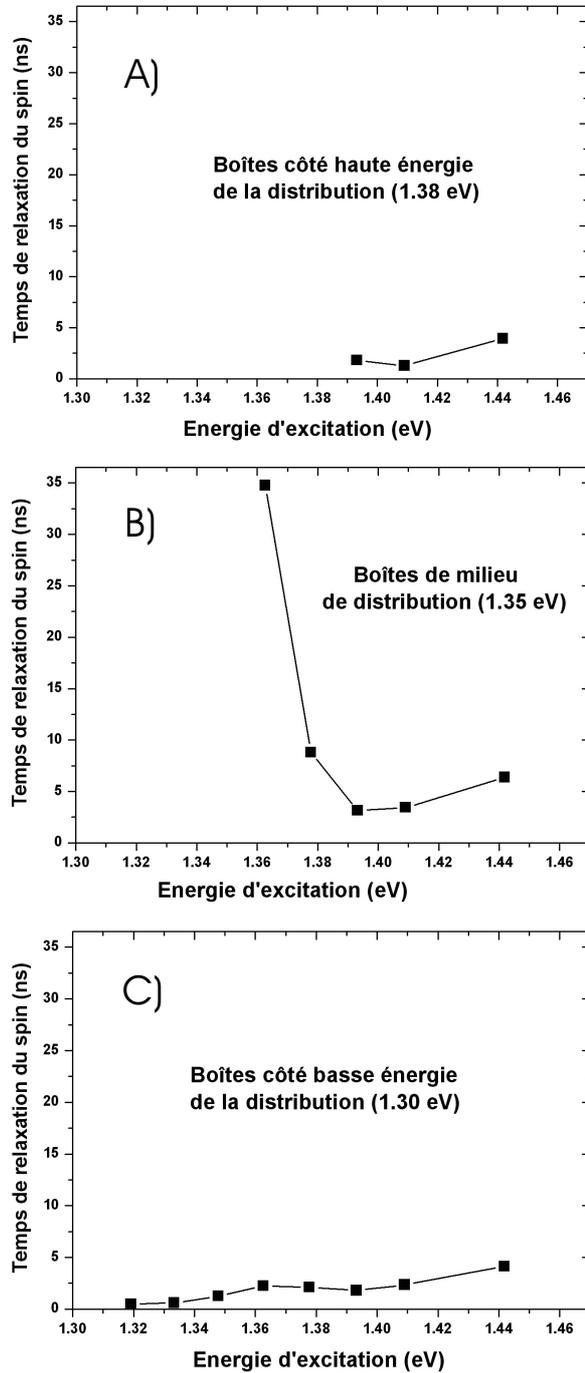


FIG. 5.4.16 – Temps de relaxation du spin excitonique à 10 K en fonction de l'énergie d'excitation pour les boîtes quantiques de trois parties distinctes de la distribution inhomogène de l'échantillon  $E$  (partie haute énergie, partie centrale et partie basse énergie). Les trois parties correspondent à des sous-distributions d'une largeur de 15 meV centrées respectivement à 1.38, 1.35 et 1.30 eV.

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>191</sup>

en figure 5.4.14 à l'aide de la même procédure de régression linéaire que précédemment. L'énergie d'excitation est reportée en abscisse de cette représentation alors que l'énergie de détection occupe l'axe des ordonnées. Le facteur  $\alpha$  est tracé à l'aide de nuances de gris, les teintes sombres représentant des valeurs élevées. Le noir correspond à  $\alpha = 0.6$  et le blanc à  $\alpha = 0$ .

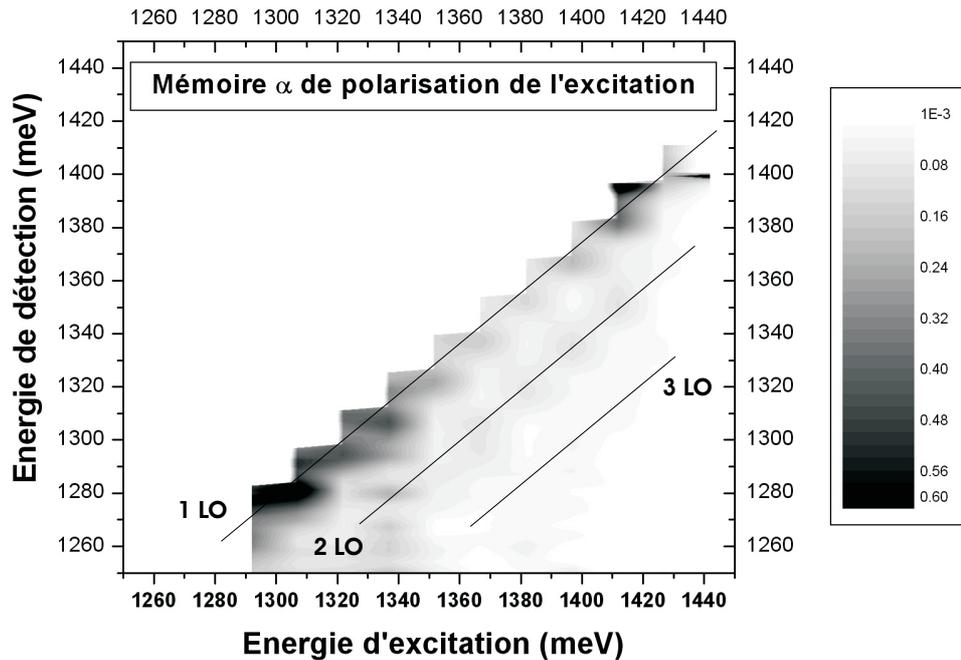


FIG. 5.4.17 – Représentation 3D du facteur  $\alpha$  de mémoire de la polarisation de l'excitation dans différentes situations d'excitation quasi-résonante et pour les différentes boîtes de la distribution inhomogène de l'échantillon  $E$ . L'énergie d'excitation est portée en abscisse, l'énergie de détection est portée en ordonnée.

Sur la figure 5.4.17, nous voyons que dans le cas d'une excitation non-résonante dans la couche de mouillage (ce qui correspond sur la figure à la dernière colonne à droite), le facteur de mémoire  $\alpha$  est en moyenne nul sur l'ensemble de la distribution.

Par ailleurs, sur cette figure, il est aisé de distinguer l'apparition des répliques phonon LO vues en figure 5.4.10. Les deux premières apparaissent à toutes les énergies d'excitation sous forme de droites, d'équations  $E_{détection} = E_{excitation} - 32meV$  et  $E_{détection} = E_{excitation} - 64meV$ , alignées avec la première bissectrice. La troisième réplique, d'équation  $E_{détection} = E_{excitation} - 96meV$ , est plus ténue et ne semble apparaître qu'en milieu de distribution, là où le signal de luminescence est le plus intense.

Sur cette même figure, nous voyons que le facteur de mémoire  $\alpha$  est

systématiquement plus élevé sur les répliques phonon optiques qu'en dehors. A énergie d'excitation fixée, il va décroissant de la première réplique à la seconde puis à la troisième lorsqu'elle est visible. Par ailleurs, il est plus grand sur les deux bords de la distribution que sur le centre (voir la figure 5.4.18 qui est une coupe de la représentation 3D selon la première réplique  $E_{excitation} = E_{détection} + 32meV$ ). La valeur la plus élevée observée est de  $\alpha = 0.6$ , dans le cas d'une excitation de la partie basse énergie (centrée à 1.30 eV) de la distribution à l'aide d'une excitation quasi-résonante 32 meV au dessus (voir figure 5.4.18). En dehors des répliques, le facteur  $\alpha$  est en moyenne très faible.

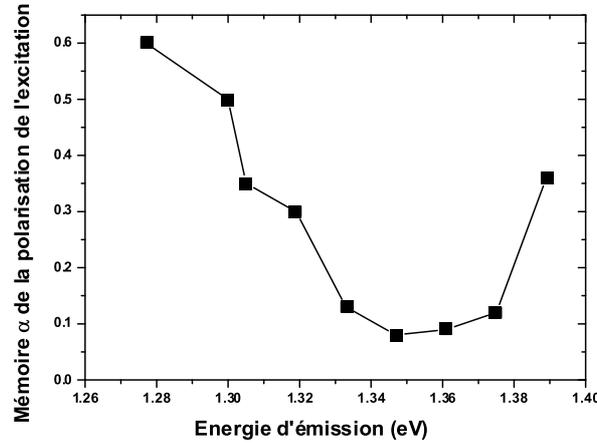


FIG. 5.4.18 – Facteur  $\alpha$  de mémoire de la polarisation du laser exciteur en fonction de l'énergie d'émission des boîtes au sein de la distribution inhomogène de l'échantillon  $E$ , dans le cas d'une excitation quasi-résonante à 10 K à l'aide de la première réplique LO correspondant à une coupe de la représentation 3D selon la première réplique  $E_{excitation} = E_{détection} + 32meV$ .

Nous sommes donc à nouveau en face de comportements différents pour le centre et les bords de la distribution et c'est sur les boîtes à plus basse énergie, sur la première réplique LO, que nous trouvons le facteur  $\alpha$  le plus élevé qui peut monter jusqu'à 0.6.

Nous notons sur l'ensemble de ces résultats qu'il existe une corrélation qualitative à 10 K entre le temps de relaxation du spin de l'exciton et la mémoire  $\alpha$  de l'orientation optique de l'excitation : au centre de la distribution, la dynamique de spin est plus lente et la mémoire de la polarisation du laser faible. Par contre sur les bords de la distribution, et de façon plus marquée du côté basse énergie, la dynamique de spin est plus rapide et plus facilement accélérée par la modification des conditions d'excitation alors qu'en même temps la mémoire de la polarisation

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>193</sup>

du laser excitateur est en moyenne plus forte. Il y a une corrélation d'ensemble : la dynamique de relaxation du spin de l'exciton est plus rapide lorsque la mémoire de polarisation du laser est plus forte.

### Discussion

#### Origine des structures dans les spectres d'excitation quasi-résonante

Nous avons vu que nos spectres de photoluminescence en régime d'excitation quasi-résonante continue (figure 5.4.14) font apparaître des structures, d'environ 15 meV de large, régulièrement décalées de 32 meV par rapport à l'énergie d'excitation. Nous nous sommes contentés jusqu'ici de les appeler répliques et nous avons suggéré qu'elles pouvaient être le résultat d'un rôle particulier joué par les phonons optiques, qui ont une énergie de 36 meV dans le GaAs massif et de 30 meV dans InAs contraint. Sur ces répliques, nous avons observé systématiquement une plus grande mémoire de la polarisation de l'excitation que sur les autres parties des spectres.

Nous avons extrait plus haut d'après notre modèle un facteur  $\alpha = 0.44$  (voir figure 5.4.13) de mémoire de la polarisation de l'excitation à 1.41 eV sur la première réplique phonon optique. Le fait que ce facteur devienne très faible en dehors des répliques phonon prouve le rôle particulier que ces dernières occupent dans la cascade non-radiative des porteurs avant la luminescence : celle-ci s'opère probablement beaucoup plus vite lorsqu'elle est assistée par les phonons LO, comme montrée par Markincevicius [153], et autorise dans ces cas une plus grande préservation de la mémoire de polarisation de l'excitation.

Sur le même échantillon E, des expériences d'excitation quasi-résonante pulsée avec des impulsions de 1.5 ps ont également montré une structuration des spectres de photoluminescence, avec les mêmes structures régulièrement espacées de 32 meV, mais beaucoup plus marquée que dans nos expériences [31] : dans ce régime pulsé, la première réplique phonon optique ne fait que 2.8 meV de large alors que la largeur du laser, donnée par la durée des impulsions, est de 440  $\mu$ eV.

Pour interpréter ces résultats et plus généralement la présence de structures dans les spectres, nous pouvons imaginer deux processus impliquant un phonon optique.

Le premier processus est un processus d'absorption des boîtes à l'énergie  $E_{excitation}$ , au niveau de leurs niveaux excités et du continuum mixte "boîte quantique-couche de mouillage" (le continuum 0D-2D introduit au chapitre I), accompagnée de l'émission spontanée d'un ou de plusieurs phonons optiques de sorte que  $E_{excitation} = E_{luminescence} + n.E_{LO}$  avec  $n = 1.2.3$ . Dans un tel processus, après excitation et émission spontanée de phonons optiques, chaque boîte est peuplée avec un exciton dans l'état  $|X\rangle$  ou  $|Y\rangle$ . L'émission spontanée de phonons optiques, qui se produit typiquement en 20 ps [153], entraîne cependant qu'il n'y a pas de relation de phase entre les excitons dans les différentes boîtes : sur

l'ensemble des boîtes, il y a une perte de mémoire de la phase de l'excitation. Nous observons alors une largeur de la réplique qui est la signature de l'émission spontanée de phonons et aussi de la distribution inhomogène des niveaux d'énergie des boîtes.

Le second processus est un processus d'absorption sur des niveaux de polarons excitoniques des boîtes (ie les particules correspondant à un exciton dans la boîte en couplage fort avec un phonon optique [52]). D'après les calculs d'Olivier Verzele [52], une énergie de 32 meV correspond, pour une boîte de rayon 13 nm et de hauteur 1.3 nm, à l'écart entre le niveau excitonique fondamental  $|S_e, S_h, 0\rangle$  et un niveau de polaron excitonique qui est une combinaison linéaire de  $|S_e, S_h, 1\rangle$  et  $|P_e, S_h, 0\rangle$ . Dans une expérience, après absorption sur ce niveau polaron, le phonon optique se désintègre en une dizaine de picosecondes [52] et nous sondons ensuite la luminescence au niveau de la transition fondamentale  $S_e \longleftrightarrow S_h$ . L'état polaron ayant une largeur spectrale donnée par le temps de vie de sa composante phonon optique, qui est de l'ordre de 10 ps à 10 K dans GaAs [52], ce qui correspond à  $75 \mu\text{eV}$ , nous nous attendons lors d'un tel processus sur boîte unique à observer des répliques de l'excitation de l'ordre de  $150 \mu\text{eV}$  de large en photoluminescence, une fois les  $75 \mu\text{eV}$  convolués avec l'élargissement dus aux processus purement déphasants étudiés au chapitre III. Or nos répliques sur un ensemble de boîtes font  $15 \text{ meV}$  de large, c'est à dire presque 500 fois plus. Cela peut signifier deux choses : soit ce processus d'absorption sur les niveaux polarons contribue de façon minoritaire à la structuration de nos spectres de photoluminescence, soit il est en effet présent mais la largeur de nos répliques est due à la distribution inhomogène en énergie des niveaux polarons sur les boîtes que nous sondons dans notre expérience sur l'échantillon E.

Dans le cas de l'excitation pulsée sur l'échantillon E, une expérience de battements a démontré qu'il est possible de créer une cohérence quantique entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  à l'aide de la configuration d'excitation quasi-résonante utilisant une réplique phonon LO [31]. Ce résultat peut s'interpréter comme suit dans le cadre du processus impliquant les polarons : les deux états polarons correspondant à  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont élargis de  $75 \mu\text{eV}$  à cause de la durée de vie courte de leur partie phonon optique (10 ps). Cet élargissement étant plus grand que le splitting d'échange, qui vaut environ  $30 \mu\text{eV}$  sur cet échantillon (voir chapitre IV figure 4.1.1), le laser, de largeur  $440 \mu\text{eV}$ , excite en même temps les deux composantes  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de l'état polaron et crée une cohérence de phase entre elles deux. Cette cohérence perdure ensuite lors de la désintégration de la partie phonon.

Cependant, la différence de largeur spectrale des répliques entre nos travaux et les travaux de la référence [31] ( $15 \text{ meV}$  contre  $2.8 \text{ meV}$ ) montre que ce ne sont pas les mêmes processus physiques qui sont mis en jeu dans notre cas d'excitation continue quasi-résonante et dans le cas d'une excitation pulsée quasi-résonante. Cette différence tient peut-être à la densité de puissance d'excitation, qui reste,

#### 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>195</sup>

dans notre cas, toujours très faible (de 0.25 à 7.5  $W/cm^2$ ) par rapport à un mode d'excitation pulsée. Dans notre cas, nous ne pouvons pas trancher entre le premier et le second type de processus pour expliquer la structuration de nos spectres en excitation quasi-résonante continue et nous ne pouvons pas non plus conclure sur notre capacité à créer une cohérence quantique sur les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  dans cette configuration. Des études complémentaires avec des densités de puissance plus élevées devraient à cet égard nous apporter des informations sur la façon dont la relaxation non-radiative assistée par les phonons LO se produit en excitation quasi-résonante.

##### Relaxation efficace du spin excitonique

Nos résultats sur la relaxation du spin de l'exciton sous excitation quasi-résonante sur l'échantillon E montrent qu'il est possible de modifier la dynamique de cette relaxation sur deux ordres de grandeur, de 300 ps à 40 ns, ce qui nous permet de faire un lien entre les observations de temps de relaxation longs sur des ensembles de boîtes, faites par d'autres groupes [28, 93, 88] et nous-mêmes, et la dynamique rapide de relaxation que nous avons mise en évidence sur plusieurs boîtes uniques des échantillons A,B,C et D.

Nous avons vu précédemment que les mécanismes de relaxation du spin d'un porteur dans un semiconducteur sont régis soit par le couplage spin-orbite (mécanismes Elliot-Yafet et D'yakonov-Perel) soit par une interaction d'échange avec d'autres porteurs (mécanisme Bir-Aronov-Pikus).

Comme nous l'avons déjà mentionné, les mécanismes basés sur le couplage spin-orbite reposant sur la diffusion du vecteur d'onde, leur influence sur la dynamique du spin d'un porteur dans une boîte quantique est faible et conduit à des temps de relaxation du spin excitonique à 10 K qui sont évalués à plusieurs millisecondes [146].

Si ce n'est pas le couplage spin-orbite, l'interaction d'échange est-elle capable de provoquer, par rapport à une valeur de l'ordre de 10 ns [28], l'accélération de la relaxation du spin de l'exciton que nous avons observée sur boîte unique et sur notre ensemble de boîtes sous excitation quasi-résonante ?

Dans le chapitre IV sur la structure fine de l'exciton, nous avons donné une description de l'interaction d'échange effective électron-trou au sein de l'exciton fondamental, qui se base sur une situation où il n'y a qu'un électron dans un état lié "de conduction" de la boîte et un trou dans un état de trou de la boîte. Nous avons vu que cette description nous permet de reproduire les principales tendances observées dans la structure fine de la photoluminescence d'une boîte quantique unique : existence d'un splitting d'échange et de deux raies polarisées linéairement selon X et Y.

En réalité dans une expérience de photoluminescence non-résonante, plusieurs états de la boîte et de son environnement sont peuplés simultanément. En dessous de la saturation de la transition, une seule paire électron-trou est présente

en moyenne sur le niveau fondamental de la boîte mais au même instant des électrons et des trous sont en train de relaxer non-radiativement vers ce niveau. Ces porteurs au cours de leur relaxation non-radiative peuvent interagir par échange avec les porteurs de la paire électron-trou sur le niveau fondamental et il nous faudra considérer cet effet, dont nous ne connaissons pas la magnitude. Il correspond aux termes d'échange que nous avons mis en évidence théoriquement dans le chapitre IV au paragraphe 4.2.4 (troisième cas dans notre calcul), que nous avons négligés lors de notre description de l'échange effectif entre l'électron et le trou si seule une paire électron-trou est présente dans la boîte.

Nous proposons que ce sont ces mécanismes d'échange avec les porteurs environnants (dans la boîte ou dans la couche de mouillage) qui permettent de faire relaxer efficacement le spin de l'exciton fondamental dans le cas d'une excitation non-résonante ou quasi-résonante, que ce soit sur boîte unique ou sur un ensemble de boîtes. Sur un ensemble de boîtes, nos expériences montrent que cet effet varie avec la classe de boîtes sondée et avec les conditions d'excitation. Sur boîte unique, des expériences complémentaires à venir pourront peut-être nous permettre de modifier là-aussi la dynamique du spin excitonique et nous apporter des informations complémentaires sur la façon dont cette modification se produit.

#### Symétrie des états impliqués dans la transition fondamentale

A présent se pose une question : la description que nous avons donnée de la transition fondamentale est-elle encore valable si l'exciton fondamental est ainsi perturbé par une interaction d'échange avec un environnement de porteurs ? Pouvons nous encore travailler avec cette image de deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  ?

En effet, en présence d'un environnement de porteurs fluctuant, qui interagissent tous par échange avec l'exciton fondamental, des fluctuations assez rapides de cet environnement peuvent suffire à moyenniser à zéro l'interaction d'échange effective entre l'électron et le trou au sein de l'exciton fondamental. Dans une telle situation, les états brillants doivent retrouver leur symétries circulaires  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  d'origine (une resymétrisation similaire en présence d'un champ électrostatique fluctuant avait été explorée théoriquement par Robson Ferreira dans [154]).

En premier lieu, nous pouvons apporter une réponse expérimentale à cette question de la symétrie des états excitoniques impliqués dans la transition fondamentale dans le cas d'une excitation non-résonante. Nous montrons à cet effet le spectre brut des taux de polarisation mesurés en excitation quasi-résonante à 1.29 eV à 10 K (figure 5.4.19).

Ces spectres ne font plus nettement apparaître de réplique phonon LO et pourtant, dans le cas où le laser d'excitation est polarisé linéairement suivant la direction X (courbe supérieure sur la figure 5.4.19), le taux de polarisation de

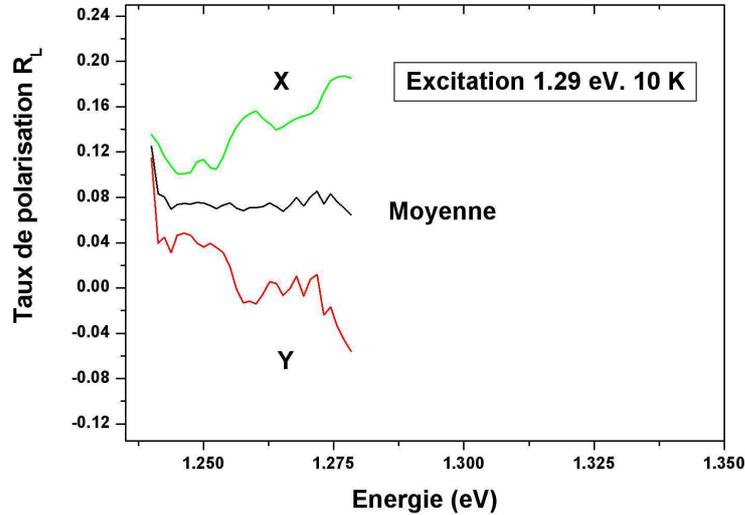


FIG. 5.4.19 – Spectres bruts de taux de polarisation de la photoluminescence des boîtes de l'échantillon  $E$  en excitation quasi-résonante à 1.29 eV. La courbe supérieure est le taux de polarisation mesuré lorsque le laser est polarisé linéairement selon  $X$ , la courbe inférieure pour le laser selon  $Y$ . La courbe du milieu est la moyenne des deux.

la photoluminescence est supérieur au taux moyen  $\frac{1}{2}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2}))$  (courbe du milieu sur la figure 5.4.19), et ce pour toute la gamme d'énergie de détection 1.25-1.28 eV. Ceci prouve que, dans cette configuration d'excitation, il existe une mémoire non nulle de la polarisation linéaire de l'excitation même en dehors des répliques phonon.

Le fait que nous observions une mémoire de polarisation en configuration linéaire est une preuve que la symétrie des états de l'exciton fondamental dans la boîte est une symétrie linéaire  $X$  et  $Y$ . En effet, si ces états sont de symétrie  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ , nous créons lors de l'excitation quasi-résonante une superposition cohérente ( $\sigma^+ + \sigma^-$ ) au niveau de l'absorption et il faut, pour observer de la mémoire de polarisation linéaire dans la luminescence quelques dizaines de meV plus bas, préserver cette superposition cohérente lors de la relaxation non-radiative pour l'amener sur l'état excitonique fondamental qui luminesce. Si les travaux de la référence [31] suggèrent que cela est possible, en régime d'excitation pulsée, lors du processus correspondant à la première réplique phonon optique, cela ne peut être le cas en dehors des répliques sur toute la gamme d'énergie de détection 1.25-1.28 eV. C'est pourquoi nous déduisons des spectres de la figure 5.4.19 que la symétrie des états excitoniques fondamentaux de nos boîtes est bien linéaire  $X$  et  $Y$ , et ce même dans les cas où les conditions d'excitation non-résonante peuvent créer un environnement fluctuant qui fait perdre efficacement son orientation au

spin excitonique (sur la figure 5.4.15, nous voyons que les boîtes correspondant à la gamme d'énergie de détection 1.25-1.28 eV présentent en effet un temps de relaxation de spin moyen de 100 ps sous excitation quasi-résonante à 1.29 eV).

Nos déductions nous permettent également de rejeter l'hypothèse de la présence de boîtes chargées dans certaines parties de notre distribution sous excitation non-résonante : de telles boîtes auraient en effet des symétries  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  pour leur transition fondamentale [85]. Ici sur l'ensemble de boîtes comme précédemment sur boîte unique, c'est la recombinaison d'excitons neutres que nous observons.

En second lieu, nous pouvons apporter un argument théorique sur la question de la symétrie linéaire X et Y des états excitoniques impliqués dans la transition fondamentale, qui détaille pourquoi l'interaction d'échange due aux porteurs dans les autres états est trop faible pour modifier complètement la symétrie de  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  : les fonctions d'onde de l'électron dans le premier état électronique et du trou dans le premier état de trou ont un fort recouvrement spatial et le recouvrement est moindre entre la fonction d'onde d'un des deux porteurs constituant l'exciton fondamental et la fonction d'onde d'un porteur dans un autre état confiné de la boîte ou un état de la couche de mouillage. Cela signifie que l'interaction d'échange la plus intense est celle qui opère effectivement entre l'électron et le trou constituant l'exciton fondamental : c'est elle qui domine a priori la structure fine de la transition. Nous avons déjà donné le même argument au chapitre précédent (paragraphe 4.2.4) pour justifier que l'effet de l'interaction d'échange au sein des électrons du système se réduisait pour la description de l'exciton fondamental dans une boîte quantique à une interaction d'échange entre l'électron et le trou formant l'exciton fondamental : nous avons négligé l'échange entre le premier état de trou et d'autres états de trou en invoquant un recouvrement des fonctions d'onde faible. Ici la situation est proche même si nous pouvons avoir au même instant plusieurs trous et plusieurs électrons autour de l'exciton fondamental. Nous considérons toujours que c'est l'interaction électron-trou au sein de l'exciton fondamental qui régit la structure fine de la transition fondamentale et que les processus d'échange avec les autres porteurs présents interviennent ensuite comme une perturbation à cette description, en permettant à l'exciton fondamental de voir son spin relaxer, c'est à dire de passer de l'état  $|X\rangle$  à l'état  $|Y\rangle$ .

### Conclusion

La dynamique du spin de l'exciton nous apparaît finalement dépendre fortement de différents paramètres expérimentaux, comme la classe de boîtes sondée au sein de la distribution ou la façon dont l'excitation est réalisée. Cette dynamique n'est donc pas entièrement régie par des propriétés purement intrinsèques aux boîtes : l'environnement des boîtes et la façon dont nous l'activons expérimentalement est visiblement un paramètre clé.

Afin de tenter de comprendre plus finement comment cet environnement intervient, nous allons réaliser des études en température dans différents régimes

## 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>199</sup>

d'excitation quasi-résonante.

### 5.4.3 Etude en température

Nous allons, dans cette section, mener des études en température sous excitation quasi-résonante dans trois configurations, qui correspondent à l'excitation, à 32 meV de leur transition fondamentale, de boîtes de trois parties distinctes de la distribution inhomogène de l'échantillon E : la partie haute énergie, la partie du milieu de distribution et la partie basse énergie. Ces trois parties correspondent à des fenêtres d'émission de 40 meV centrées respectivement à 1.38, 1.33 et 1.28 eV à 10 K. Les trois configurations d'excitation étudiées sont schématisées sur la figure 5.4.20.

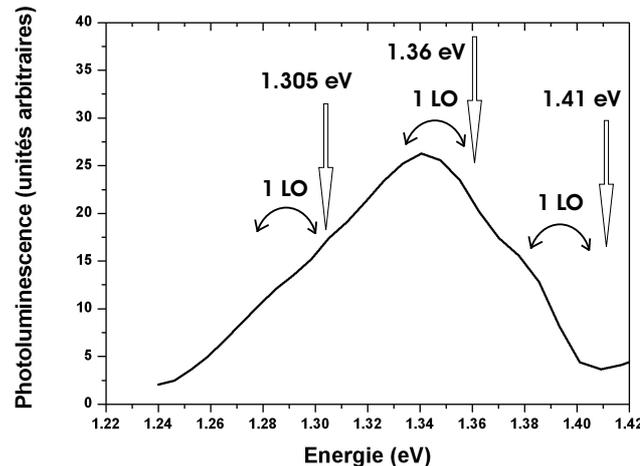


FIG. 5.4.20 – Les trois configurations d'excitation quasi-résonante pour lesquelles nous réalisons l'étude en température sur l'échantillon E : excitation partie haute énergie de la distribution, milieu de distribution et partie basse énergie. A 10 K, ces trois excitations correspondent à des positions en énergie du laser qui sont respectivement : 1.41 eV (880 nm), 1.36 eV (910 nm) et 1.305 eV (950 nm).

### Temps de relaxation du spin excitonique en fonction de la température sous excitation quasi-résonante.

Nous traçons en figure 5.4.21 trois représentations planaires concernant le temps de relaxation du spin excitonique, tel que déduit de nos mesures de taux de polarisation linéaire de la photoluminescence et de l'utilisation de notre modèle. Ces trois représentations correspondent, de haut en bas, à l'excitation quasi-résonante à 32 meV de la partie haute énergie, du milieu et de la partie

basse énergie de la distribution des boîtes. L'énergie d'excitation change avec la température, afin de suivre le décalage en température des niveaux d'énergie. En abscisse se trouve la température, en ordonnée l'énergie d'émission des boîtes à 10 K et selon l'axe z le temps de relaxation du spin de l'exciton, pour lequel nous avons utilisé un code de nuances de gris. Un gris plus sombre signifie un temps plus long, le blanc correspond à 100 ps et le noir à 30 ns.

Les résultats dans le cas de l'excitation quasi-résonante de la partie basse énergie de la distribution (figure 5.4.21 c)) sont plus bruités que dans les deux autres configurations d'excitation (figure 5.4.21 a) et b)), à cause de la chute d'intensité du signal mais une tendance s'impose dans les trois cas : à 45 K, tous les temps de relaxation de spin chutent violemment, descendant en dessous de la nanoseconde.

Par ailleurs, nous observons sur les deux premières configurations d'excitation (haute énergie et milieu de distribution, c'est à dire a) et b) sur la figure 5.4.21) une tendance qui va dans le sens contraire pour la gamme de température 0–45 K : dans cette gamme, le temps de relaxation de spin augmente avec la température, et ce sur toute la distribution des boîtes. Cette tendance est très marquée sur les boîtes de bord de distribution (c'est à dire les boîtes des parties haute et basse énergie), dont le spin excitonique relaxe en 500 ps typiquement en excitation quasi-résonante à 10 K et qui voient ce temps passer à 1 ou 2 ns lorsque nous augmentons la température jusqu'à 40 K dans les mêmes conditions d'excitation (voir un exemple figure 5.4.22).

Sur les boîtes du milieu de distribution, cette tendance apparaît aussi très nettement avec l'excitation à haute énergie (à 1.41 eV à 10 K) : le spin excitonique relaxe en 2 ou 3 ns à 10 K et cette relaxation se ralentit en montant la température pour durer 10 ns à 30 K (figure 5.4.21 a)). Lorsque l'excitation est faite à 32 meV au dessus du milieu de distribution (figure 5.4.21 b)), il est plus difficile de voir cette évolution sur les boîtes au centre de la distribution car la relaxation du spin est déjà très lente sur ces boîtes à 10 K (10 ns) : en montant à 30 K, cette relaxation se ralentit peut-être encore plus mais notre technique expérimentale n'est pas capable de distinguer avec beaucoup de résolution un déclin en 10 ns et un déclin en 30 ns.

Nous retiendrons donc de cette analyse la chose suivante sous excitation quasi-résonante : pour toute la distribution, la relaxation du spin de l'exciton se ralentit avec la hausse de la température entre 10 et 40 K avant de s'accélérer brutalement avec un comportement thermoactivé à 45 K.

### **Mémoire de la polarisation du laser en fonction de la température sous excitation quasi-résonante**

Regardons à présent l'évolution en température dans les mêmes conditions du facteur  $\alpha$  de mémoire de la polarisation du laser, que nous reportons en figure

## 5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES<sup>201</sup>

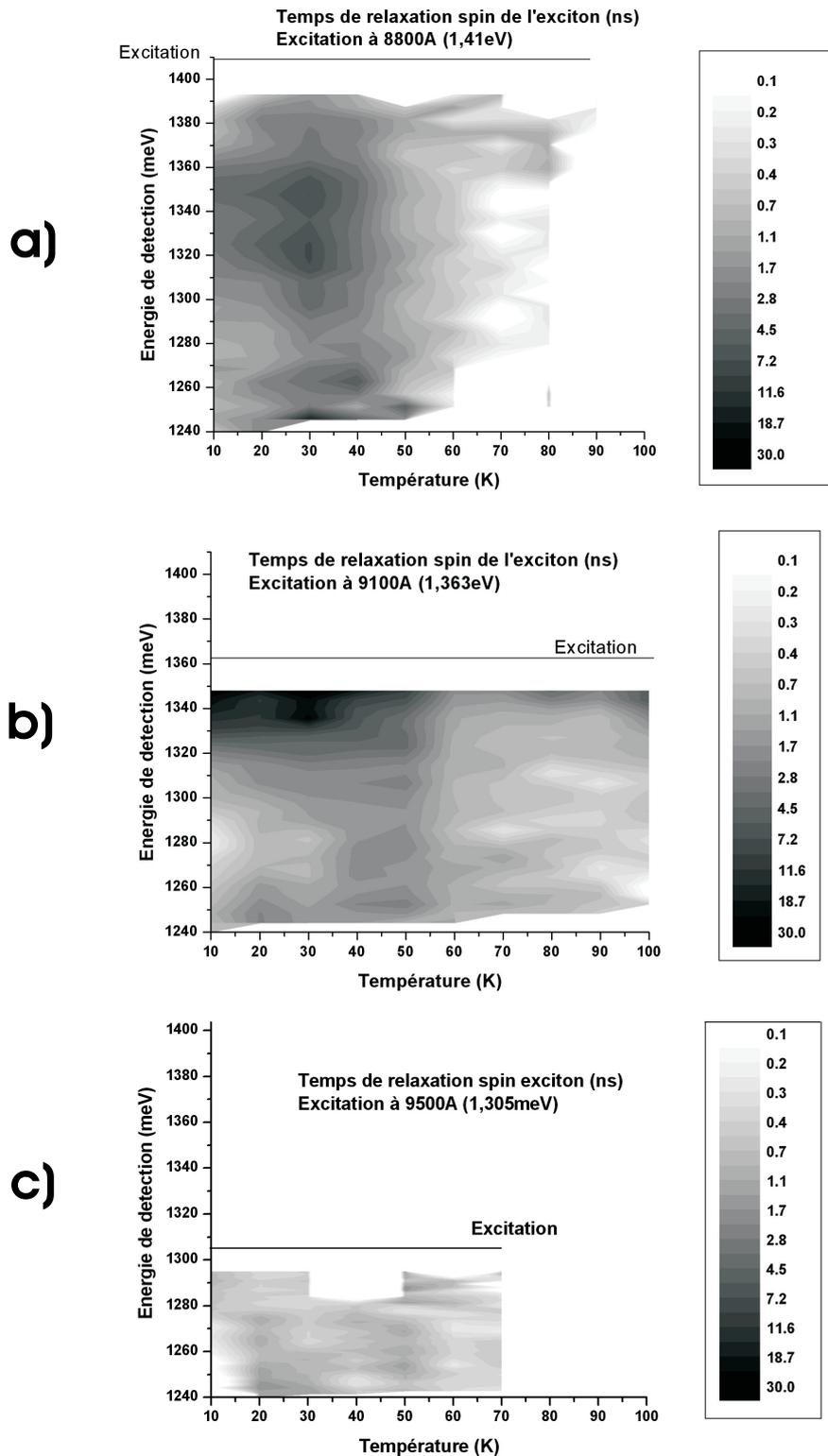


FIG. 5.4.21 – Temps de relaxation de spin en fonction de la température pour l'ensemble de la distribution des boîtes de l'échantillon  $E$  dans trois configurations d'excitation quasi-résonante différentes : excitation à 32 meV de la partie haute énergie (a), excitation à 32 meV du milieu de distribution (b) et excitation à 32 meV de la partie basse énergie (c). L'énergie d'excitation indiquée sur la figure correspond à une excitation quasi-résonante à la température de 10 K.

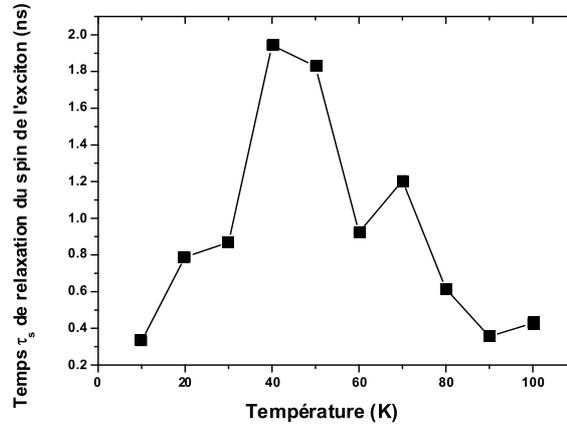


FIG. 5.4.22 – Temps de relaxation de spin en fonction de la température pour les boîtes de la partie basse énergie de la distribution (correspondant à une fenêtre d'émission de 40 meV centrée à 1.28 eV à 10 K), sous excitation sélective sur la partie haute énergie de la distribution (ce qui correspond à une excitation à 1.41 eV à 10K).

5.4.23 dans une représentation 3D similaire à la précédente et où le facteur  $\alpha$  de mémoire de polarisation du laser est porté sur l'axe z avec l'aide de nuances de gris. Un gris sombre correspond à une valeur élevée de  $\alpha$  : le noir correspond à  $\alpha = 0.3$  et le blanc à  $\alpha = 0$ .

Encore une fois, les données sous excitation à basse énergie (figure 5.4.23 c)) sont moins propres que dans les deux autres configurations d'excitation. Pour les excitations à haute énergie et à 32 meV au dessus du milieu de distribution (figure 5.4.23 a) et b)), les répliques phonons structurent très fortement les valeurs de  $\alpha$  : la mémoire est forte sur la première réplique ( $\alpha = 30\%$  en excitation haute énergie et  $\alpha = 11\%$  en excitant le milieu de distribution), un peu moins sur la seconde ( $\alpha = 12\%$  en excitation haute énergie et  $\alpha = 8\%$  en excitant le milieu de distribution) et encore moins sur la troisième ( $\alpha = 8\%$  en excitation haute énergie). En dehors de ces répliques, le facteur de mémoire est en première approximation très faible (entre 0 et 4 %).

L'évolution en température de cette mémoire fait apparaître plusieurs tendances : en dehors des répliques phonon, la mémoire reste faible à toute température, à son niveau à 10 K ( $< 4\%$ ). Sur les répliques, nous retrouvons un seuil vers 45 K où le facteur  $\alpha$  de mémoire chute dans toutes les situations : cela est très visible sur les données présentées en figure 5.4.23 sur la seconde et la troisième réplique phonon en excitation haute énergie (figure 5.4.23 a)) ainsi que

5.4. EXCITATION QUASI-RÉSONANTE D'UN ENSEMBLE DE BOÎTES203

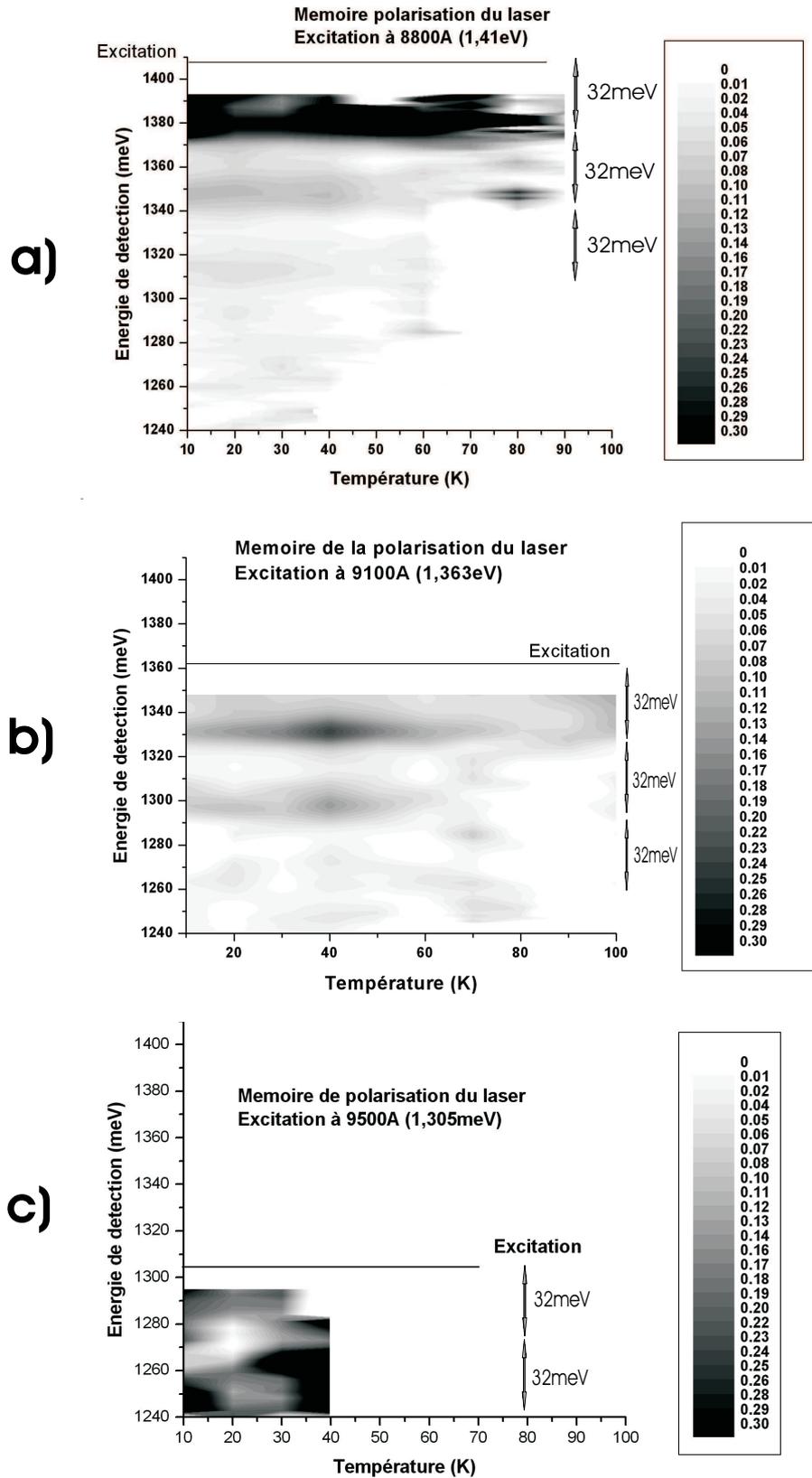


FIG. 5.4.23 – Facteur de mémoire  $\alpha$  de la polarisation de l'excitation en fonction de la température pour l'ensemble de la distribution des boîtes dans les trois conditions d'excitation quasi-résonante différentes.

sur la première et la seconde en excitant le milieu de distribution (figure 5.4.23 b)). En revanche sur la première réplique en excitation haute énergie (figure 5.4.23 a)), nous ne distinguons pas cette chute de  $\alpha$  à 45 K à cause d'un artefact dans le traitement de nos données.

En effet si, dans notre modèle, nous exprimons  $\alpha$  uniquement à partir des paramètres expérimentaux (c'est à dire les taux de polarisation linéaire de la photoluminescence),  $\alpha$  est donné par l'équation 5.4.27 et nous voyons que dans le cas où  $[R_L^{sat} - \frac{1}{2}(R_L(0) - R_L(\frac{\pi}{2}))]$  est proche de 0, la valeur de  $\alpha$  extraite de nos mesures via notre modèle peut devenir très bruitée. C'est ce qui se produit au dessus de 45 K sur la première réplique en excitation haute énergie (figure 5.4.23 a)) et nous déduisons artificiellement une valeur élevée de  $\alpha$  alors qu'il n'en est peut-être rien.

En dessous de 45 K, l'évolution générale de  $\alpha$  est plus bruitée : en première lecture la mémoire stagne sur les répliques entre 10 et 40 K sous excitation sur la partie haute énergie (figure 5.4.23 a)) alors qu'elle augmente avec la température sous excitation sélective juste au dessus du milieu de distribution (figure 5.4.23 b)).

Nous retiendrons finalement de ces données sur le facteur de mémoire  $\alpha$  le fait qu'un seuil à 45 K est à nouveau présent et qu'il n'y a pas de corrélations aussi nette entre  $\alpha$  et le temps de relaxation de spin que celles qui étaient apparues à 10 K.

## Discussion

Nous avons vu que pour toute la distribution, la relaxation du spin de l'exciton se ralentit avec la hausse de la température entre 10 et 40 K avant de s'accélérer brutalement avec un comportement thermoactivé qui apparaît à partir de 45 K.

La présence pour la relaxation d'un seuil à 45 K correspond à ce que nous avons déjà observé en excitation non-résonante au dessus de la couche de mouillage : il existe à partir de 45 K des canaux de relaxation du spin de l'exciton très efficaces, impliquant le passage assisté par des phonons optiques vers des états d'énergie plus élevée au sein de la boîte ou dans le continuum des états mixtes boîte-couche de mouillage : la relaxation du spin excitonique devient dans ce cas rapide à l'échelle des processus radiatifs. Ce seuil à 45 K se retrouve également dans l'évolution du facteur  $\alpha$  de mémoire de la polarisation du laser : l'orientation optique de l'exciton fondamental induite par le laser (lorsque  $\alpha \neq 0$ ) est perdue si les phonons optiques assistent ensuite des transitions de l'état excitonique fondamental vers d'autres états à plus haute énergie.

Les effets d'augmentation du temps de relaxation du spin excitonique avec la température entre 10 et 40 K font penser au phénomène de rétrécissement par le mouvement que nous avons étudié lorsque nous nous sommes intéressés à la décohérence de l'exciton fondamental au chapitre II. Dans l'hypothèse, que

nous faisons, où les modifications de la dynamique de spin que nous observons dans nos expériences sont dues à l'activation d'un environnement de porteurs qui interagissent par échange avec les porteurs impliqués dans la transition fondamentale, un ralentissement de la dynamique de relaxation du spin de l'exciton lorsque nous augmentons la température signifie qu'à température plus élevée, cet environnement de porteurs fluctue tellement vite que son action effective par échange sur le spin de l'exciton fondamental diminue : l'exciton fondamental ne ressent plus qu'un champ d'échange moyenné à zéro à cause des fluctuations trop rapides de l'environnement. L'évolution du temps de relaxation de spin sous excitation quasi-résonante en fonction de la température, tracée en figure 5.4.22, est très similaire à ce qui est observé pour la relaxation du spin de l'exciton dans les puits quantiques. Dans le cas des puits, c'est le phénomène de rétrécissement par le mouvement, propre au mécanisme D'yakonov Perel dans certaines situations, qui explique le ralentissement de la relaxation du spin excitonique lorsque la température augmente de 10 à 50 K (voir paragraphe 5.1.1). Le fait que nous observions une telle évolution ici pour le spin de l'exciton fondamental dans des boîtes quantiques sous excitation non-résonante pourrait aussi suggérer que celui-ci est perturbé par la présence de porteurs spécifiquement présents dans la couche de mouillage, dont la nature 2D autorise l'existence du mécanisme de rétrécissement par le mouvement de type D'yakonov Perel. Dans ce cas, le mauvais isolement de la transition fondamentale par rapport à la couche de mouillage sur les boîtes de l'échantillon A pourrait peut-être expliquer les dynamiques rapides de relaxation du spin que nous y avons constatées sous excitation non-résonante même à 5 et 10 K.

## 5.5 Conclusions

Par des expériences sur un ensemble de boîtes, nous avons montré qu'il existe un lien direct entre les propriétés de polarisation de la photoluminescence émise sous excitation non-résonante par une boîte quantique et la dynamique du spin de l'exciton fondamental. Ce lien nous a permis, par des mesures de taux de polarisation de la photoluminescence dans différentes configurations d'excitation, d'étudier la dynamique du spin excitonique tant dans un ensemble de boîtes quantiques qu'au niveau de la boîte unique.

Sur différentes boîtes uniques des échantillons A,B,C et D, nous avons ainsi mis en évidence une relaxation rapide du spin de l'exciton (de l'ordre de 100 ps) même à basse température (en dessous de 50 K). Dans ce cas nous avons pu, par des expériences de photoluminescence résolue dans le temps et en polarisation, donner une image plus précise de cette relaxation. A 5 K, il y a un transfert direct de population entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de la structure fine, qui peut s'opérer en 100 ps, et lorsque la température augmente, un nouveau canal de transfert de population entre  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  est thermoactivé : un exciton dans un

état brillant passe sur un état noir avant d'aller sur l'autre état brillant. Ce canal reste négligeable en ce qui concerne le temps de relaxation du spin excitonique dans les boîtes uniques que nous avons étudiées, où la relaxation directe entre états brillants est déjà rapide à 5 K. En revanche, la mise en évidence d'un déclin bi-exponentiel de la photoluminescence montre la nécessité de prendre en compte les états noirs dans la dynamique de la population excitonique, un aspect souvent négligé dans les études résolues en temps sur des boîtes neutres. Nos études prouvent de plus qu'il est possible de contrôler le couplage entre les états brillants et les états noirs à l'aide de la température.

Sur un ensemble de boîtes, notre approche expérimentale nous a ensuite permis d'étudier la dynamique du spin de l'exciton dans différentes configurations d'excitation de la photoluminescence et pour différentes températures. En fonction de ces paramètres, nous avons observé sur une même classe de boîtes des temps de relaxation qui s'étalent de 40 ns à 300 ps, soit des variations sur deux ordres de grandeur.

Dans toutes les configurations, la relaxation du spin excitonique est activée en température avec un seuil qui apparaît vers 45 K. Nous attribuons cette activation à l'entrée en jeu des modes de phonons optiques, dont nous voyons également l'effet dans la diminution à 45 K de notre capacité à orienter optiquement les porteurs dans les boîtes sous excitation quasi-résonante. Ceci suggère qu'il faut travailler sous la température de 45 K pour pouvoir initialiser et maintenir longtemps à l'échelle des temps radiatifs l'orientation optique d'un spin excitonique dans une boîte quantique.

La dynamique du spin excitonique s'avère également dépendre beaucoup des conditions d'excitation des boîtes. Nous observons sur certaines boîtes, d'une configuration d'excitation à une autre, une accélération d'un facteur 100 de la relaxation du spin excitonique. Nous proposons, pour expliquer ce phénomène, des effets d'interaction d'échange entre les différents porteurs présents dans le système et les deux porteurs impliqués dans la transition fondamentale. La façon dont nous créons des porteurs dans l'environnement de la boîte et dans la boîte elle-même semble jouer un rôle clé sur le maintien de l'orientation du spin de l'exciton. Cette image est corroborée par le comportement de ralentissement global de la relaxation du spin de l'exciton lors d'une augmentation de température entre 10 et 40 K. Ce comportement, typique d'un régime de rétrécissement par le mouvement de type D'yakonov-Perel, laisse penser que le spin de l'exciton dans la boîte est couplé aux spins de porteurs présents dans la couche de mouillage.

Dans le schéma d'émission de paires de photons intriquées en polarisation, proposé par Oliver Benson en 2001 [96] dans le but de réaliser différents protocoles de traitement quantique de l'information à l'aide de boîtes, et présenté dans ce manuscrit en introduction du chapitre IV, la relaxation longitudinale du spin de l'exciton neutre est un paramètre clé. Si elle s'effectue plus vite que la recombinaison radiative, les deux chemins empruntés par la cascade bi-

excitonique ne sont plus distingués et il n'y a plus d'analogie avec le cas de la transition à deux photons dans l'atome de Sodium. Dans un tel cas, le schéma devient caduque pour la production d'intrication. Or les tentatives de réalisation expérimentale de ce schéma ont toujours été faites sous excitation non-résonante. Dans ces conditions, certains groupes ont pu observer, à défaut d'intrication, des corrélations en polarisation entre les photons émis successivement au cours de la cascade [3, 98], ce qui suggère une relaxation suffisamment lente du spin de l'exciton neutre. D'autres expériences en revanche ne font état d'aucune corrélation et pourraient bien être limitées par une relaxation longitudinale rapide du spin de l'exciton sous excitation non-résonante.

Dans des boîtes quantiques chargées (dopées p), la relaxation du spin de l'électron par l'interaction hyperfine directe avec les noyaux atomiques environnants a été observée récemment [155]. Dans une boîte chargée p, si une paire électron-trou additionnelle est créée, nous obtenons un électron et deux trous dans la boîte. Les trous occupent alors un état singulet à deux particules et il n'y a plus d'interaction d'échange électron-trou. Dans ce cas, la relaxation du spin de l'électron est le résultat de l'interaction hyperfine avec les noyaux atomiques environnants uniquement et elle se fait en 500 ps [155].

Cependant, dans une boîte neutre, l'interaction hyperfine ne joue qu'un rôle négligeable sur la relaxation du spin de l'exciton neutre. En effet, dans ce dernier cas, lorsqu'une seule paire électron-trou est présente dans la boîte, c'est l'interaction d'échange électron-trou qui prime sur l'interaction hyperfine de l'électron et du trou avec les noyaux. L'électron est soumis à un champ magnétique effectif, dû à l'interaction d'échange avec le trou, qui l'emporte sur le champ magnétique effectif créé par l'interaction hyperfine avec les noyaux. C'est en réalité l'interaction d'échange électron-trou qui est responsable du maintien efficace, pendant un temps d'une dizaine de nanosecondes [28], de l'orientation du spin de l'exciton neutre sur les axes X et Y.

Nos études mettent en lumière la grande variété des régimes qui peuvent apparaître lorsque nous observons la dynamique d'un seul spin dans une boîte quantique au sein d'un environnement complexe. Nous avons avancé que l'interaction d'échange avec les porteurs additionnels dans la boîte et dans son environnement, générés lors d'une excitation non-résonante ou quasi-résonante de la transition fondamentale, peut nous faire passer d'un régime de gel du spin de l'exciton neutre dans la boîte à un régime de relaxation efficace de ce spin, qui peut alors s'effectuer en 100 ps.

Dans le domaine des mémoires fondées sur les boîtes quantiques, pour tirer parti de la possibilité d'orienter durablement le spin d'un exciton neutre dans une boîte quantique sans avoir recours à un champ magnétique externe, il faut chercher à minimiser ces effets. Le contrôle strictement résonant de la transition semble à cet égard la manière la plus propre d'opérer. Cependant, nous avons montré que nous pouvions également obtenir un gel de la relaxation du spin

excitonique à 10 K sous excitation largement non-résonante. Ceci pourrait s'avérer fructueux pour certaines applications, les techniques d'excitation non-résonante étant généralement, dans le domaine de l'optique des semiconducteurs, beaucoup plus aisées à mettre en oeuvre que celles de contrôle résonant.

# Conclusion

Cette thèse traite de différentes propriétés physiques des boîtes quantiques, importantes pour leur application dans le domaine du traitement quantique de l'information, que ce soit dans le but de progresser vers la réalisation d'un ordinateur quantique à l'état solide ou dans le but de développer des sources de photons originales pour les protocoles de cryptographie quantique. Les mécanismes de décohérence et de relaxation de spin fixent une limite dans ces deux domaines. L'exciton fondamental dans une boîte quantique étant le mieux protégé de son environnement et donc le plus prometteur pour les applications, c'est sa décohérence et la relaxation de son spin que nous avons étudiées.

Dans le chapitre III, nous avons montré, par des expériences de micro-photoluminescence sur boîte quantique unique en fonction de la température, que le spectre d'émission d'une boîte unique dévie d'un profil purement lorentzien lorsque la température augmente : il est constitué d'une raie centrale dite "raie à zéro phonon" accompagnée d'ailes dont le poids dans le spectre augmente avec la température. Ces ailes finissent par dominer l'allure spectrale de l'émission à 80 K. Nous avons interprété ces résultats dans le cadre du modèle de Huang-Rhys pour l'interaction exciton-phonons acoustiques. L'excellent accord de notre modélisation avec l'expérience montre que l'exciton dans la boîte se couple de façon non-perturbative avec les phonons acoustiques, donnant naissance à une entité mixte d'excitation qui est en réalité un exciton habillé d'un nuage de phonons acoustiques. La nature mixte de cette entité d'excitation, qui résulte du couplage de la boîte avec le réseau cristallin, affecte fortement les propriétés de cohérence à haute température. A 100 K, la cohérence de l'exciton est perdue en quelques picosecondes alors qu'elle perdure quelques centaines de picosecondes à 5 K. Nous avons montré que ce mode de couplage de l'exciton aux phonons acoustiques est intrinsèque aux boîtes quantiques et dépend peu des matériaux utilisés pour leur fabrication. Il impose une limite pour les applications à haute température, tant pour le calcul quantique que pour la production de photons indiscernables pour la cryptographie quantique. Dans le domaine des lasers à boîtes quantiques, notre étude permet également d'obtenir une description de l'influence à haute température des phonons acoustiques sur les largeurs des courbes spectrales de gain.

Dans une seconde partie du chapitre III, nous nous sommes intéressés aux

mécanismes d'élargissement de la raie à zéro phonon. En faisant varier la puissance lumineuse d'excitation et la température, nous avons mis en évidence l'existence de mécanismes extrinsèques d'élargissement. A basse température, lorsque la puissance d'excitation augmente, la raie à zéro phonon s'élargit avant d'atteindre un régime de saturation où sa largeur vaut  $\Gamma_s$ . De même à basse puissance d'excitation, lorsque la température augmente entre 10 et 50 K, la raie s'élargit et à la température où sa largeur vaut  $\Gamma_s$ , sa largeur ne dépend plus de la puissance d'excitation. Nous avons interprété qualitativement ces résultats à l'aide d'un modèle d'environnement électrostatique fluctuant autour de la boîte, composé de pièges qui peuvent se vider et se peupler de manière dynamique, et dont les fluctuations peuvent être activées par une hausse de la température ou de la puissance d'excitation. Dans ce modèle, la température à partir de laquelle la largeur de raie ne dépend plus de la puissance d'excitation donne une estimation de l'énergie de liaison des pièges. L'existence de cet environnement fluctuant apporte des éléments de réponse importants concernant le détail des mécanismes de décohérence à basse température : nous montrons que cet environnement joue un rôle essentiel entre 5 et 50 K dans l'élargissement des raies d'émission et pensons qu'il détermine également le temps de décohérence à 5 K. Cet environnement est extrinsèque aux boîtes quantiques mêmes : son influence varie beaucoup d'un échantillon à l'autre et même d'une boîte à l'autre. Dans des échantillons plus "propres", son influence pourrait être quasi-nulle et nous pourrions alors assouplir les conditions d'utilisation des boîtes pour les applications : même avec une excitation non-résonante et même à 40 K, il deviendrait envisageable de rester dans le régime purement radiatif pour l'exciton fondamental.

Dans le chapitre IV, nous avons réalisé des études de photoluminescence résolue en polarisation sur des boîtes uniques et sur un ensemble de boîtes pour étudier la force d'oscillateur et l'écart en énergie  $\Delta_{XY}$  des deux excitons brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  formant la structure fine d'une boîte anisotrope. L'anisotropie des forces d'oscillateurs de ces deux excitons se traduit dans nos expériences par un taux de polarisation linéaire non nul de l'émission. Par une étude statistique sur plusieurs centaines de boîtes, nous avons obtenu le résultat original que la magnitude de cette anisotropie dépend de la densité locale de boîtes quantiques. La différence des forces d'oscillateur est en moyenne faible en zone dense et présente une forte dispersion en zone frontière. En particulier, nous avons exhibé sur boîte unique en zone frontière des anisotropies géantes des forces d'oscillateurs, qui peuvent atteindre 82 % de taux de polarisation linéaire.

Ces résultats, comparés à une modélisation des anisotropies de polarisation ne prenant en compte que les états de type trous lourds, montre que cette modélisation ne suffit pas à décrire l'anisotropie des forces d'oscillateur : les trous légers jouent un rôle important et ne sont pas forcément découplés des trous lourds comme dans les puits quantiques contraints de façon bi-axiale. Sur une boîte en

zone frontière présentant une forte anisotropie de forces d'oscillateur, des études de micro-photoluminescence résolue en polarisation sous champ magnétique viennent corroborer la présence de trous légers. Très récemment, des travaux du groupe de Skolnick à Sheffield ont repris l'étude de boîtes anisotropes en zone diluée similaires à celles que nous avons analysées. Par des études sous champ magnétique en configuration Faraday et Voigt, ces travaux confirment eux-aussi le rôle joué par les trous légers dans ce type de boîtes [156].

En ce qui concerne le second aspect, c'est à dire le splitting d'échange  $\Delta_{XY}$ , notre étude comparée de son évolution en zone dense et en zone frontière montre qu'il est primordial de tenir compte du détail de l'état des contraintes pour pouvoir reproduire les tendances observées. Cette constatation, associée à nos résultats originaux sur les anisotropies de polarisation, mettent en lumière le rôle essentiel joué par la symétrie des états, la géométrie précise des boîtes et le détail du champ des contraintes résultant de la croissance dans la variété des comportements rencontrés dans les boîtes quantiques.

Pour mieux comprendre ces comportements et en tirer le meilleur parti dans des applications, des analyses structurales plus précises à l'échelle de la boîte unique sont nécessaires. En fabriquant les boîtes de manière mieux contrôlée par exemple ou en appliquant après croissance des champs de contrainte extérieurs, il deviendrait envisageable de moduler la polarisation de l'émission d'une boîte ou d'un ensemble de boîtes, pour créer des sources de lumière de polarisation ajustable, ou encore de moduler la magnitude de l'interaction électron-trou, pour contrôler de manière extérieure le couplage de spin entre ces deux particules. Au stade actuel de maîtrise de la fabrication des boîtes en revanche, notre étude montre qu'il est préférable, pour la génération de photons intriqués, de travailler en zone dense avec des boîtes à forte symétrie. Inversement, les anisotropies géantes de polarisation que nous avons mises à jour sur boîte unique en zone frontière montrent qu'il est déjà possible, sur les échantillons actuels, de travailler avec des émetteurs de photons uniques très polarisés.

Le chapitre V est consacré à l'étude de la relaxation du spin de l'exciton neutre dans les boîtes quantiques InAs/GaAs, c'est-à-dire au transfert de population entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Sur un ensemble de boîtes, nous avons observé une augmentation du taux de polarisation linéaire de la photoluminescence lorsque la température augmente et avons montré, à l'aide d'un modèle, que ce phénomène est dû à une relaxation du spin de l'exciton activée en température. Nous avons déduit de ce modèle un temps de relaxation de spin de 3 ns à 10 K et une énergie d'activation de 45 meV, que nous interprétons comme l'énergie à partir de laquelle les phonons optiques permettent d'assister des transitions entre états liés de la boîte.

Ces résultats montrent qu'il est possible de sonder la relaxation du spin de l'exciton par la simple mesure d'un taux de polarisation de la photoluminescence de boîtes sous excitation non-résonante, ce qui offre un nouvel outil, plus facile

d'emploi que les expériences résonantes résolues dans le temps, pour l'étude de la relaxation du spin. A l'aide de ce nouvel outil expérimental, nous avons été capables d'effectuer les premières mesures de temps de relaxation de spin de l'exciton à l'échelle d'une boîte quantique unique InAs/GaAs. Nous avons observé, sur plusieurs boîtes uniques différentes sous excitation non-résonante, une relaxation très rapide du spin à 10K (quelques centaines de picosecondes). Dans ce cas, nos expériences de micro-photoluminescence résolue dans le temps et en température ont mis en évidence une dynamique bi-exponentielle de déclin de la photoluminescence. Nous avons expliqué très précisément ces résultats à l'aide d'une modélisation qui montre qu'il est important de tenir compte des états noirs dans la dynamique de population des excitons brillants  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  et donne des informations quantitatives à ce sujet.

Enfin, par des expériences de photoluminescence à 10 K sur un ensemble de boîtes sous excitation quasi-résonante, nous sommes parvenus à évoluer progressivement d'un régime de relaxation lente du spin de l'exciton (40 ns) à un régime de relaxation rapide (100 ps) en jouant sur l'énergie d'excitation des boîtes. Ces résultats semblent montrer l'influence importante, sur la dynamique de relaxation du spin de l'exciton dans la boîte, de la présence de porteurs additionnels créés dans le système lors de l'excitation non-résonante. Le ralentissement de 300 ps à 2 ns de cette relaxation en augmentant la température de 10 à 40 K, qui rappelle le rétrécissement par le mouvement dans le mécanisme D'yakonov-Perel, suggère que ces porteurs évoluent dans la couche de mouillage 2D proche de la boîte.

Pour les applications dans le domaine des mémoires à base de boîtes quantiques, l'étude du maintien de l'orientation de spin de l'exciton dans une boîte sous excitation non-résonante est importante car le contrôle purement résonant d'une boîte quantique ou même d'un ensemble reste très difficile expérimentalement. Dans le développement de composants de mémoire fondées sur des boîtes quantiques, il est préférable de pouvoir conserver des méthodes expérimentales faciles d'emploi, comme l'excitation non-résonante, classiquement utilisée dans l'optique des semiconducteurs. Ceci nécessite de comprendre finement comment un spin dans une boîte interagit avec son environnement lorsque celui-ci ne se réduit pas au réseau cristallin. A cet égard nos résultats sur l'exciton neutre, mais aussi d'autres résultats sur les excitons dans les boîtes dopées p ou n [155, 32], sont prometteurs car ils suggèrent tous que sous excitation non-résonante, il est possible de conserver l'orientation de spin de l'exciton pendant plusieurs dizaines de nanosecondes. En revanche, les fluctuations électrostatiques de l'environnement des boîtes, que nous avons étudiées au chapitre III, devraient affecter plus fortement les propriétés de cohérence des excitons chargés que celles de l'exciton neutre, puisque l'interaction coulombienne d'un électron piégé avec un exciton chargé est plus grande.

Pour la réalisation de qubits pour le calcul quantique, nos études de la dynamique de relaxation du spin, par les informations qu'elles donnent sur l'interaction

du spin dans une boîte avec les autres degrés de liberté du système, permettront d'aider à comprendre les mécanismes de décohérence des qubits de spin lorsqu'ils seront accessibles aux expérimentateurs. Par ailleurs, l'existence des états noirs, dont nous avons vu une trace dans nos expériences de photoluminescence résolue en temps, ouvre également des perspectives intéressantes dans ce domaine. Ces états étant largement découplés de la lumière, nous nous attendons à ce que leurs propriétés de cohérence soient encore meilleures que celles des états brillants, puisque leur limite radiative est repoussée à plusieurs dizaines de nanosecondes : ils pourraient servir de support à l'écriture de qu-bits encore mieux protégés de leur environnement. L'accès optique résonant aux états noirs sur une boîte unique pourrait être réalisé à l'aide d'un pompage résonant à deux photons, puisque ces états possèdent un moment cinétique  $J_z = \pm 2$ . La lecture optique pourrait ensuite être faite sur les états brillants, dont nous avons montré qu'il est possible de les coupler aux états noirs à l'aide d'une activation thermique.



# Bibliographie

- [1] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device. Science*, (290) :2282, 2000.
- [2] P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Buratto. *Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. Nature*, (406) :968, 2000.
- [3] Charles Santori, Matthew Pelton, Glenn Solomon, Yseulte Dale, and Yoshihisa Yamamoto. *Triggered Single Photons from a Quantum Dot. Phys. Rev. Lett.*, 2001.
- [4] E. Moreau, I. Robert, J. M. Gérard, I. Abram, L. Manin, and V. Thierry-Mieg. *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. Appl. Phys. Lett.*, 79 :2856, 2001.
- [5] Charles Santori, David Fattal, Jelena Vukovic, Glenn S. Solomon, and Yoshihisa Yamamoto. *Indistinguishable photons from a single-photon device. Nature*, 2002.
- [6] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip, and I. Abram. *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot. Phys. Rev. B.*, 2005.
- [7] J.P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. *Strong coupling in a single quantum dot semiconductor microcavity system. Nature*, 2004.
- [8] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. Nature*, 2004.
- [9] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch. *Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity. Phys. Rev. Lett.*, 2005.
- [10] Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Christian Schulhauser, Alexander Högele, Bernhard Urbaszek, Ewan J. McGhee, Alexander O. Govorov, Jorge M. Garcia, Brian D. Gerardot, and Pierre M. Petroff. *Hybridization of electronic states in quantum dots through photon emission. Nature*, 2004.

- [11] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :3005, 1996.
- [12] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. *Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure*. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :1138, 1994.
- [13] R. Steffen, A. Forchel, T. L. Reinecke, T. Koch, M. Albrecht, J. Oshinowo, and F. Faller. *Single quantum dots as local probes of electronic properties of semiconductors*. *Phys. Rev. B.*, 54 :1510, 1996.
- [14] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître, and J. M. Gérard. *Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons*. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :4152, 1999.
- [15] D. Gammon, Al. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov. *Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :5176, 2001.
- [16] D. DiVincenzo. *The Physical Implementation of Quantum Computation*. *Fortschr. Phys.*, 48 :771, 2000.
- [17] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter. *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*. *Nature*, 2002.
- [18] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham. *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :133603, 2001.
- [19] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando. *Exciton Rabi Oscillation in a Single Quantum Dot*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :246401, 2001.
- [20] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes Jr., and C. K. Shih. *Interplay of Rabi Oscillations and Quantum Interference in Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :087401, 2002.
- [21] B. D. Gerardot, S. Strauf, M. J. A. De Dood, D. Bouwmeester, and P. M. Petroff. *Photons statistics and energy transfer in individual InAs self-assembled quantum dot molecules*. *Quantum Dots 2004 Proceedings*, 2004.
- [22] G. Ortner, M. Bayer, A. Larionov, V. B. Timofeev, A. Forchel, Y. B. Lyanda-Geller, T. L. Reinecke, P. Hawrylak, S. Fafard, and Z. Wasilewski. *Fine Structure of Excitons in InAs/GaAs Coupled Quantum Dots : A Sensitive Test of Electronic Coupling*. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :086404, 2003.
- [23] H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter, and J. J. Finley. *Direct Observation of Controlled Coupling in an Individual Quantum Dot Molecule*. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :047402, 2005.

- [24] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :157401, 2001.
- [25] D. Birkedal, K. Leosson, and J. M. Hvam. *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :227401, 2001.
- [26] M. Bayer and A. Forchel. *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As/GaAs self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :041308, 2002.
- [27] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, and J. M. Gérard. *Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects*. *Phys. Rev. B*, 66 :041306, 2002.
- [28] M.Paillard, X.Marie, P.Renucci, T.Amand, A.Jbeli, and J.M.Gérard. *Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1634, 2001.
- [29] H. Gotoh, H. Ando, H. Kamada, A. Chavez-Pirson, and J. Temmyo. *Spin relaxation of excitons in zero-dimensional InGaAs quantum disks*. *Appl. Phys. Lett.*, 72 :1341, 1998.
- [30] A. I. Tartakovskii, J. Cahill, M. N. Makhonin, D. M. Whittaker, J-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer, and M. Hopkinson. *Dynamics of Coherent and Incoherent Spin Polarizations in Ensembles of Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :057401, 2004.
- [31] M. Sénès, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, J. Tribollet, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, and J.-M. Gérard. *Exciton spin manipulation in InAs/GaAs quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects*. *Phys. Rev.B*, 71 :115334, 2005.
- [32] S. Laurent, B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, , and P. Voisin. *Electrical Control of Hole Spin Relaxation in Charge Tunable InAs/GaAs Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :147401, 2005.
- [33] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. *Continuous Absorption Background and Decoherence in Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :216804, 2002.
- [34] Herbert Kroemer. *Quasi-Electric Fields and Band Offsets : Teaching Electrons New Tricks*. Nobel lecture, 2000.
- [35] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. *Appl. Phys. Lett.*, 47 :1099, 1985.

- [36] Y. Arakawa and H. Sakaki. *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*. *Appl. Phys. Lett.*, 40(11) :939, 1982.
- [37] I.M.Stransky and L.von Krastanov. *Akad. Wis.Lit.Abh.Math.Naturwiss.Kl.IIb*, 146 :797, 1939.
- [38] Dieter Bimberg, Marius Grundmann, and Nikolai N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley and Sons Ltd, 1998.
- [39] M. H. Baier, S. Watanabe, E. Pelucchi, and E. Kapon. *High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatterned substrates*. *Appl. Phys. Lett.*, 84 :1943, 2004.
- [40] D. Chithrani, R. L. Williams, J. Lefebvre, P. J. Poole, and G. C. Aers. *Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self-assembled quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 84 :978, 2004.
- [41] M. A. Kastner. *Artificial Atoms*. *Physics Today*, 46 :24, 1993.
- [42] Gerald Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1992.
- [43] Aleksandar Jankovic. *Etats électroniques des boîtes quantiques de semi-conducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin*. PhD thesis, Université Paris VI, 2004.
- [44] Peter Y.Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer-Verlag, 1999.
- [45] A. J. Williamson, L. W. Wang, and A. Zunger. *Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 62 :12963, 2000.
- [46] M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg. *InAs/GaAs pyramidal quantum dots : Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*. *Phys. Rev. B*, 52 :11969, 1995.
- [47] Oliver Stier. *Electronic and optical properties of quantum dots and wires*. PhD thesis, Technische Universität Berlin, 2001.
- [48] Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka, and Y. Arakawa. *Near-field coherent excitation spectroscopy of InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :3887, 2000.
- [49] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Delalande C. Voisin, Ph. Roussignol, A. Lemaître, and J. M. Gérard. *Efficient acoustic phonon broadening in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :033313, 2001.
- [50] Cécile Kammerer. *Spectroscopie de boîtes quantiques uniques : effets de l'environnement*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.

- [51] U. Bockelmann and G. Bastard. *Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases*. *Phys. Rev. B*, 42 :8947, 1990.
- [52] Olivier Verzelen. *Interaction électron-phonon LO dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [53] Alain Aspect, Claude Fabre, and Gilbert Grynberg. *Cours d'optique quantique*. Editions de l'Ecole Polytechnique, 2000.
- [54] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard. *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :716, 1994.
- [55] J. M. Gérard and al. *J. Cryst. Growth.*, 150 :351, 1995.
- [56] H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, Z. N. Pfeiffer, and K. W. West. *Science*, 264 :1740, 1994.
- [57] Benito Alén, Florian Bickel, Khaled Karrai, Richard J. Warburton, and Pierre M. Petroff. *Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 83 :2235, 2003.
- [58] M. Born and E. Wolf. *Principle of optics*. Plenum Press, Oxford, 1980.
- [59] C. Couteau, S. Moehl, F. Tinjod, J. M. Gérard, K. Kheng, H. Mariette, J. A. Gaj, R. Romestain, and J. P. Poizat. *Correlated photon emission from a single II–VI quantum dot*. *Appl. Phys. Lett.*, 85 :6251, 2002.
- [60] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. *Phys. Rev. B*, 63 :155307, 2001.
- [61] I. Favero, G. Cassabois, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, Ph. Roussignol, and J. M. Gérard. *Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 68 :233301, 2003.
- [62] Gerald D. Mahan. *Many-Particle Physics*. Plenum Publishing Corporation, 1981.
- [63] S. Rudin and T. L. Reinecke. *Effects of acoustic-phonon scattering on optical line shapes and exciton dephasing in semiconductors and semiconductors quantum wells*. *Phys. Rev. B*, 66 :085314, 2002.
- [64] Angela Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [65] E. Peter, J. Hours, P. Senellart, A. Vasanelli, A. Cavanna, J. Bloch, and J. M. Gérard. *Phonon sidebands in exciton and biexciton emission from single GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 69 :041307, 2004.

- [66] S. Kako, K. Hoshino, S. Iwamoto, S. Ishida, and Y. Arakawa. *Exciton and biexciton luminescence from single hexagonal GaN/AlN self-assembled quantum dots. Appl. Phys. Lett.*, 85 :64, 2004.
- [67] B. Urbaszek, E. J. McGhee, M. Krüger, R. J. Warburton, K. Karrai, T. Amand, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, and J. M. Garcia. *Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots : Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering. Phys. Rev. B*, 69 :035304, 2004.
- [68] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. *Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement. Phys. Rev. B*, 75 :115328, 2005.
- [69] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. *Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots . Phys. Rev.Lett.*, 88 :146803, 2002.
- [70] P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, and F. Martelli. *Well-width dependence of exciton-phonon scattering in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs single quantum wells. Phys. Rev. B*, 59 :2215, 1999.
- [71] D. Kim, J. Shah, J. E. Cunningham, T. C. Damen, W. Schäfer, M. Hartmann, and S. SchmittRink. *Giant excitonic resonance in time-resolved four-wave mixing in quantum wells. Phys. Rev.Lett*, 68 :1006, 1992.
- [72] D. Gammon, S. Rudin, T. L. Reinecke, D. S. Katzer, and C. S. Kyono. *Phonon broadening of excitons in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells. Phys. Rev.B*, 61 :16785, 1995.
- [73] T. Takagahara. *Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots. Phys. Rev. B*, 60 :2638, 1999.
- [74] E. A. Muljarov and R. Zimmermann. *Dephasing in Quantum Dots : Quadratic Coupling to Acoustic Phonons. Phys. Rev. Lett*, 93 :237401, 2004.
- [75] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. *Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement. Phys. Rev. B*, 71 :115328, 2005.
- [76] G. Ortner, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Rudin, T. L. Reinecke and S. Fafard, Z. Wasilewski, and A. Forchel. *Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in InAs/GaAs quantum dots. Phys. Rev. B*, 70 :201301, 2004.
- [77] K. Leosson, J.R.Jensen, J.M.Hvam, and W.Langbein. *Linewidth statistics of single InGaAs quantum dot photoluminescence lines. Phys.Stat.Sol.*, 221 :49, 2000.
- [78] S.Taneko. The anharmonic vibrational properties of phonon impurity modes in solids. In *Phonons*, page 458. Edited by Nusimovici,M.A.Flammarion., 1971.
- [79] W. Fon, K. C. Schwab, J. M. Worlock, and M. L. Roukes. *Phonon scattering mechanisms in suspended nanostructures from 4 to 40 K. Phys. Rev. B*, 66 :045302, 2002.

- [80] P. Senellart, E. Peter, J. Hours, A. Vasanelli, A. Cavanna, and J. Bloch. *Non perturbative exciton-phonon coupling for a single GaAs quantum dot.* *Phys.Stat.Sol.(c)*, 1 :438, 2004.
- [81] B. Urbaszek, E. J. McGhee, M. Krüger, R. J. Warburton, K. Karrai, T. Amand, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, and J. M. Garcia. *Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots : Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering.* *Phys. Rev. B*, 69 :035304, 2004.
- [82] R. G. Neuhauser, K. T. Shimizu, W. K. Woo, S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi. *Correlation between Fluorescence Intermittency and Spectral Diffusion in Single Semiconductor Quantum Dots.* *Phys. Rev. Lett.*, 85 :3301, 2000.
- [83] M-E. Pistol, P. Castrillo, D. Hessman, J. A. Prieto, and L. Samuelson. *Random telegraph noise in photoluminescence from individual self-assembled quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 59 :10725, 1999.
- [84] Lucien Besombes. *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2001.
- [85] Alexander Högele, Stefan Seidl, Martin Kroner, Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Brian D. Gerardot, and Pierre M. Petroff. *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot .* *Phys. Rev. Lett.*, 93 :217401, 2004.
- [86] A.I. Burshtein. *JETP*, 22 :939, 1966.
- [87] Stefan Stuffer, Patrick Ester, Artur Zrenner, and Max Bichler. *Power broadening of the exciton linewidth in a single InGaAs/GaAs quantum dot.* *Appl. Phys. Lett.*, 85 :4202, 2004.
- [88] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. *Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 70 :033301, 2004.
- [89] Alexander Högele and Khaled Karraï. *Communication privée.*
- [90] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff. *Shell structure and electron-electron interaction in self-assembled InAs quantum dots.* *Europhys. Lett*, 36 :197, 1996.
- [91] Y. Hasegawa, H. Kiyama, Q. K. Xue, and T. Sakurai. *Atomic structure of faceted planes of three-dimensional InAs islands on GaAs(001) studied by scanning tunneling microscope.* *Appl. Phys. Lett.*, 72 :2265, 1998.
- [92] Y. Nabetani, T. Ishikawa, S. Noda, and A. Sasaki. *Initial growth stage and optical properties of a three-dimensional InAs structure on GaAs.* *J. Appl. Phys.*, 76 :347, 1994.
- [93] A. S. Lenihan, M. V. Gurudev Dutt, D. G. Steel, S. Ghosh, and P. K. Bhattacharya. *Raman Coherence Beats from Entangled Polarization Eigenstates in InAs Quantum Dots.* *Phys. Rev. Lett.*, 88 :223601, 2002.

- [94] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer. *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :195315, 2002.
- [95] W. Langbein B. Patton and U. Woggon. *Trion, biexciton, and exciton dynamics in single self-assembled CdSe quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 68 :125316, 2003.
- [96] Oliver Benson, Charles Santori, Matthew Pelton, and Yoshihisa Yamamoto. *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :2513, 2000.
- [97] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. *Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot*. *Phys. Rev. B*, 66 :045308, 2002.
- [98] R. M. Stevenson, R. M. Thompson, A. J. Shields, I. Farrer, B. E. Kardynal, D. A. Ritchie, and M. Pepper. *Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding*. *Phys. Rev. B*, 66 :081302, 2002.
- [99] E.Aubry, F.Bernardot, C.Testelin, and M.Chamarro. *Communication privée*.
- [100] S. Cortez, O. Krebs, , P. Voisin, and J. M. Gérard. *Polarization of the interband optical dipole in InAs/GaAs self-organized quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 63 :233306, 2001.
- [101] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke, and S. N. Walck. *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett*, 82 :1748, 1999.
- [102] M.Kreiter, M.Prummer, B.Hecht, and U.P.Wild. *Orientation dependance of fluorescence lifetimes near an interface*. *Journal of Chemical Physics*, 117 :9430, 2002.
- [103] Xavier Brokmann. *Propriétés de fluorescence des nanocristaux de CdSe individuels*. PhD thesis, Université Paris VI, 2004.
- [104] John Davis Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley, 1975.
- [105] W. Lukosz. *Theory of optical-environment-dependent spontaneous-emission rates for emitters in thin layers*. *Phys. Rev. B*, 22 :3030, 1980.
- [106] R. E. Kunz and W. Lukosz. *Changes in fluorescence lifetimes induced by variable optical environments*. *Phys. Rev. B*, 21 :4814, 1980.
- [107] T. Nakaoka, S. Kako, S. Ishida, M. Nishioka, and Y. Arakawa. *Optical anisotropy of self-assembled InGaAs quantum dots embedded in wall-shaped and air-bridge structures*. *Appl. Phys. Lett.*, 1 :3954, 2002.

- [108] I. Favero, G. Cassabois, A. Jankovic, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisinand C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Badolato, P. M. Petroff, and J. M. Gérard. *Giant optical anisotropy in a single InAs quantum dot in a very dilute quantum-dot ensemble. Appl. Phys. Lett.*, 86 :041904, 2005.
- [109] L. Besombes, K. Kheng, and D. Martrou. *Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface. Phys. Rev. Lett.*, 85 :425, 2000.
- [110] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno, and Y. Masumoto. *Optical anisotropy in self-assembled InP quantum dots. Phys. Rev. B*, 29 :R5300, 1999.
- [111] Jean-Louis Basdevant et Jean Dalibard. *Mécanique Quantique*. Les éditions de l'Ecole Polytechnique, 2000.
- [112] Jean Salençon. *Mécanique des Milieux Continus*. Les éditions de l'Ecole Polytechnique, 2000.
- [113] Thomas B.Badher. *Eight-band k.p model of strained zinc-blende crystals. Phys. Rev. B*, 41 :11992, 1990.
- [114] G.L. Bir and G.E. Pikus. *Symmetry and Strain Induced Effects in in Semiconductors*. Wiley, 1974.
- [115] O.Kane. *Semiconductors and semimetals*, volume 1. edited by R.K. Willardson and A.C. Beer Academic, New York, 1966.
- [116] J. M. Gerard, J. Y. Marzin, C. d'Anterroches, B. Soucail, and P. Voisin. *Optical investigation of the band structure of InAs/GaAs short-period superlattices. Appl. Phys. Lett.*, 55 :559, 1989.
- [117] O. Brandt, H. Lage, and K. Ploog. *Heavy- and light-hole character of optical transitions in InAs/GaAs single-monolayer quantum wells. Phys. Rev. B*, 45 :4217, 1991.
- [118] Jean Dalibard. *Cours de Physique Quantique. DEA Physique Quantique. Partie I : Systèmes de bosons et de fermions*.
- [119] Claude Cohen-Tannoudji, Frank Laloe, and Bernard Diu. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1993.
- [120] R.S.Knox. *Theory of excitons*. Academic Press, New York, 1963.
- [121] A.Franceschetti, L.W.Wang, H.Fu, and Alex Zunger. *Short-range versus long-range electron-hole exchange interactions in semiconductor quantum dots. Phys. Rev. B*, 58 :13367, 1998.
- [122] L.C.Andreani, F.Bassani, and A.Quattropani. *Longitudinal-transverse splitting in Wannier excitons and polaritons states. Lett.Nuovo Cimento*, 10 :1437, 1988.
- [123] M.A.Migliorato, A.G.Cullis, M.Fearn, and J.H.Jefferson. *Atomistic simulation of In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs quantum dots with nonuniform composition. Physica E*, 13 :1147, 2002.

- [124] M.A. Migliorato, D. Powell, E.A. Zibik, L.R. Wilson, M. Fearn, J.H. Jefferson, M.J. Steer and M. Hopkinson, and A.G. Cullis. *Anisotropy of the electron energy levels in  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  quantum dots with non uniform composition.* *Physica E*, 26 :436, 2005.
- [125] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg. *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band  $k\cdot p$  theory.* *Phys. Rev. B*, 59 :5688, 1999.
- [126] Gabriel Bester, Selvakumar Nair, and Alex 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 :161306, 2003.
- [127] Gabriel Bester and Alex Zunger. *Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry : Atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects.* *Phys. Rev. B*, 71 :045318, 2005.
- [128] M. Kohl, D. Heitmann, P. Grambow, and K. Ploog. *One-dimensional magneto-excitons in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  quantum wires.* *Phys. Rev. Lett*, 63 :2124, 1989.
- [129] Ulrich Bockelmann. *Etats électroniques et relaxation dans les nanostructures de semiconducteur.* PhD thesis, Université Paris VI, 1992.
- [130] U. Bockelmann and G. Bastard. *Interband absorption in quantum wires. I. Zero-magnetic-field case.* *Phys. Rev. B*, 45 :1688, 1992.
- [131] F. Patella, S. Nufri, F. Arciprete, M. Fanfoni, E. Placidi, A. Sgarlata, and A. Balzarotti. *Tracing the two- to three-dimensional transition in the  $InAs/GaAs(001)$  heteroepitaxial growth.* *Phys. Rev. B*, 67 :205308, 2003.
- [132] B.D.Gerardot, I.Shtrichman, D.Herbert, and P.M.Petroff. *J.Cryst.growth*, 252 :44, 2003.
- [133] T. Takagahara. *Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 62 :16840, 2000.
- [134] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. *Control of fine-structure splitting and biexciton binding in  $In_xGa_{1-x}As$  quantum dots by annealing.* *Phys. Rev. B*, 69 :161301, 2004.
- [135] R.Seguin, A.Schliwa, S.Rodt, K.Pötschke, U.W.Pohl, and D.Bimberg. *Quantum dot size dependance of exciton fine structure splitting.* *Proceedings of MSS 11*, 2005.
- [136] N.W.Ashcroft and N.D.Mermin. *Solid State Physics.* Brooks Cole Thomson Learning, 1976.
- [137] C. Schulhauser, D. Haft, R. J. Warburton, K. Karrai, A. O. Govorov, A. V. Kalameitsev and A. Chaplik, W. Schoenfeld, J. M. Garcia, and P. M. Petroff. *Magneto-optical properties of charged excitons in quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 66 :193303, 2002.

- [138] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi, and Y. Arakawa. *Size, shape, and strain dependence of the g factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 70 :235337, 2004.
- [139] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, and J. P. Reithmaier. *Zeeman splitting of excitons and biexcitons in single In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As/GaAs self-assembled quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 58 :R7508, 1998.
- [140] H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel, and C. T. Foxon. *Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells.* *Phys. Rev. B*, 41 :5283, 1990.
- [141] I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Couteau, J. P. Poizat, , and J. M. Gérard. *Fast exciton spin relaxation in single quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 71 :233304, 2005.
- [142] Edited by V.M.Agranovich and A.A.Maradudin. *Optical Orientation.* North Holland, 1984.
- [143] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov. *Spin relaxation in semiconductor quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 61 :12639, 2000.
- [144] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov. *Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 64 :125316, 2001.
- [145] L. M. Woods, T. L. Reinecke, and Y. Lyanda-Geller. *Spin relaxation in quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 66 :161318, 2002.
- [146] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz, and H. Kalt. *Exciton spin relaxation in single semiconductor quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 67 :205330, 2003.
- [147] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz, and H. Kalt. *Temperature dependence of polarization relaxation in semiconductor quantum dots.* *Phys. Rev. B*, 66 :161405, 2002.
- [148] J. M. Gérard, O. Cabrol, and B. Sermage. *InAs quantum boxes : Highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si.* *Appl. Phys. Lett.*, 68 :3123, 1996.
- [149] I. Robert, E. Moreau, B. Gayral, J. M. Gérard, and I. Abram. *Tailoring photon emission statistics of a single quantum box for quantum communications.* *Physica E*, 13 :606, 202.
- [150] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard§, and V. Thierry-Mieg. *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity.* *Phys. Rev. Lett.*, 81 :1110, 1998.
- [151] Olivier Labeau, Philippe Tamarat, and Brahim Lounis. *Temperature Dependence of the Luminescence Lifetime of Single CdSe/ZnS Quantum Dots.* *Phys. Rev. Lett.*, 90 :257404, 2003.
- [152] J. M. Smith, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, A. O. Govorov, K. Karrai, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff. *Voltage Control of the Spin Dynamics of*

- an Exciton in a Semiconductor Quantum Dot. Phys. Rev. Lett*, 94 :197402, 2005.
- [153] S.Marcinkevicius, A.Gaarder, and R.Leon. *Rapid carrier relaxation by phonon emission in In<sub>0.6</sub>Ga<sub>0.4</sub>As/GaAs quantum dots. Phys. Rev.B*, 64 :115307, 2001.
- [154] R.Ferreira. *Exchange coupling and polarization relaxation in self-assembled quantum dots. Physica E*, 13 :216, 2002.
- [155] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto. *Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots. Phys. Rev. Lett*, 94 :116601, 2005.
- [156] D.N.Krizhanovskii, A.Ebbens, A.I.Tartakovskii, F.Pulizzi, T.Wright, M.S.Skolnick, and M.Hopkinson. *Individual neutral and charged InGaAs-GaAs quantum dots with strong in-plane anisotropy. To appear in Phys. Rev. B*, 2005.