



HAL
open science

Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs

Guillaume Cassabois

► **To cite this version:**

Guillaume Cassabois. Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. tel-00011932

HAL Id: tel-00011932

<https://theses.hal.science/tel-00011932>

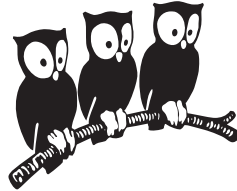
Submitted on 13 Mar 2006

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



Habilitation à diriger des recherches

UNIVERSITÉ PARIS VI

Guillaume CASSABOIS

**Origines et limites du modèle de l'atome artificiel
pour une boîte quantique de semiconducteurs**

Soutenue le 27 janvier 2006 devant le jury composé de :

MM. H. Mariette (Rapporteur)
P. M. Petroff
J. M. Raimond (Président)
Ph. Roussignol
C. Sirtori (Rapporteur)
P. Voisin (Rapporteur)

Table des matières

I.1	Atome artificiel	7
I.1.1	Morphologie	7
I.1.2	Discrétisation du spectre	9
I.1.3	Système à deux niveaux	16
I.2	Etats croisés	26
I.2.1	Existence d'un quasicontinuum	26
I.2.2	Photoluminescence up-conversion	28
I.2.3	Etats 2D/0D	31
I.2.4	Conclusion	32
I.3	Décohérence des états excités	34
I.3.1	Mesure de la largeur homogène des états excités	34
I.3.2	Elargissement assisté par phonons acoustiques	37
I.3.3	Elargissement à température nulle	40
I.3.4	Conclusion	42
I.4	Décohérence de l'état fondamental	44
I.4.1	Limites du système à deux niveaux	44
I.4.2	Origines de l'élargissement de la raie à zéro-phonon	49
I.4.3	Conclusion	67
I.5	Structure fine	70
I.5.1	Dédoublément des états brillants	70
I.5.2	Anisotropie de polarisation linéaire	79
I.5.3	Conclusion	86
I.6	Relaxation longitudinale de spin	88

I.6.1	Anisotropies	88
I.6.2	Un exemple de relaxation longitudinale efficace	93
I.6.3	Conclusion	99
I.7	Vers l'atome artificiel	101

Table des figures

I.1.1	Images par sondes locales d'une boîte quantique InAs/GaAs . . .	8
I.1.2	Schéma d'une boîte quantique dans son environnement	9
I.1.3	Densité d'états électroniques de la couche de mouillage	13
I.1.4	Densité d'états électroniques d'une boîte quantique et de la couche de mouillage	14
I.1.5	Représentations \mathfrak{R}_{cv} et \mathfrak{R}_{eh}	17
I.1.6	Spectre d'absorption d'une boîte quantique	20
I.1.7	Génération d'états de Bell	24
I.2.1	Quasicontinuum en spectroscopie d'excitation	27
I.2.2	Photoluminescence Stokes et anti-Stokes	28
I.2.3	Excitation de la photoluminescence Stokes et anti-Stokes	30
I.2.4	Transition 2D-0D dans le spectre d'absorption d'une boîte quan- tique	31
I.3.1	Identification d'un état excité	35
I.3.2	Elargissement en température des états excités	36
I.3.3	Elargissement des états excités en fonction de l'énergie	41
I.4.1	Elargissement non-lorentzien de l'état fondamental	45
I.4.2	Etats polaroniques excités	51
I.4.3	Spectre d'absorption dans le régime du couplage fort aux pho- nons optiques	52
I.4.4	Processus de déphasage du second ordre en l'interaction électron- phonon	55
I.4.5	Elargissement de l'état fondamental à basse température	58

I.4.6	Elargissement de l'état fondamental versus température et puissance	63
I.4.7	Décalage Stark induit par une charge environnante	64
I.4.8	Rétrécissement de raie en pompage quasi-résonant	66
I.5.1	Etats brillants dédoublés	71
I.5.2	Processus coulombiens direct et d'échange	72
I.5.3	Schéma de la structure fine	74
I.5.4	Statistique de l'anisotropie	80
I.5.5	Topographie AFM en zone diluée	84
I.6.1	Anisotropie de polarisation versus température	89
I.6.2	Modélisation de la dynamique du système	90
I.6.3	Photoluminescence résolue en temps	95

Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs

Le modèle de l'atome artificiel est l'image physique intuitive qui découle de la discrétisation du spectre énergétique des électrons, qui sont confinés dans les trois directions de l'espace dans une boîte quantique de semiconducteurs [1]. Cette analogie avec les systèmes atomiques s'est révélée commode et fructueuse pour étudier les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques de semiconducteurs. Elle a conduit à des expériences élégantes qui utilisent les concepts de base de la physique quantique de systèmes élémentaires. Nous retiendrons l'émission de photons uniques [2], la génération de photons indiscernables [3], les oscillations de Rabi [4], le couplage fort avec une cavité de semiconducteurs [5, 6], ou encore la démonstration d'une porte logique quantique [7].

Ces résultats ont tous en commun d'utiliser des boîtes quantiques à basse température et les expériences de spectroscopie optique sont faites sur l'état excitonique fondamental de la boîte quantique. Cette constatation lève d'emblée le problème des limites de validité du modèle de l'atome artificiel dont l'utilisation, certes fertile, semble pourtant se restreindre à des conditions expérimentales très précises.

Dans ce document, nous allons aborder plus généralement l'étude des propriétés électroniques et optiques de boîtes quantiques dans le système modèle de nanostructures auto-organisées InAs/GaAs afin de cerner les limites de validité du modèle de l'atome artificiel.

I.1 Modèle de l'atome artificiel

I.1.1 Morphologie d'une boîte quantique

Les boîtes quantiques auto-organisées InAs/GaAs se forment pendant la croissance en régime Stranski-Krastanow du matériau InAs sur un substrat de GaAs [8]. Ce mode de croissance repose sur le désaccord de paramètres de maille

des deux matériaux, qui est de 7% pour le système InAs:GaAs (paramètres de maille de 6.058 et 5.653Å pour InAs et GaAs, respectivement). Au-dessus d'une épaisseur moyenne de 1.7 monocouches d'InAs, la contrainte accumulée dans le matériau InAs relaxe localement, de manière spontanée, par migration d'atomes d'In et d'As, qui conduit à la formation d'îlots dont le diamètre est typiquement d'une vingtaine de nanomètres et la hauteur de quelques nanomètres (Fig. I.1.1(a) d'après [9]). Dans ces nanostructures, l'énergie élastique est minimisée et la courbure des plans réticulaires à l'interface InAs/GaAs permet d'accomoder le désaccord de paramètres de maille des deux matériaux (Fig. I.1.1(b) d'après [10]).

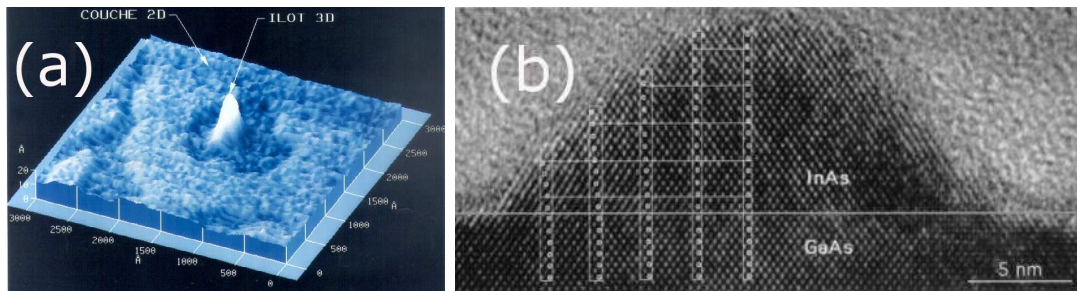


FIG. I.1.1 – (a) Topographie par microscopie à force atomique de la surface d'une hétérostructure InAs/GaAs en mode de croissance Stranski-Krastanow. Un îlot d'InAs s'est formé à partir de la couche de mouillage d'InAs localement déplétée. Cliché réalisé avant recouvrement par une couche de GaAs. (b) Plan de coupe par microscopie électronique en transmission à très haute résolution, montrant la courbure des plans réticulaires à l'interface InAs/GaAs.

La forme et la composition des boîtes quantiques dépendent des conditions de croissance. Cette remarque élémentaire traduit une difficulté centrale et essentielle pour la compréhension de leurs propriétés électroniques. En effet, l'interdiffusion des atomes de Ga dans la boîte quantique ainsi que la déformation de l'îlot due au recouvrement par une couche de GaAs impliquent qu'une caractérisation structurale précise ne peut être que postérieure à l'épitaxie. Les sondes locales utilisées pour déterminer les gradients de concentration d'In [11] sont invasives et difficilement compatibles avec une étude ultérieure par spectroscopie optique. Etudes structurale et optique ne peuvent pas être conduites simultanément sur la même boîte quantique. Dans le cadre de l'interprétation d'expériences d'optique, faut-il tenir compte des effets d'interdiffusion et de contrainte en modélisant une boîte quantique par un disque, un cône tronqué, une pyramide ou une lentille [12] ?

Quelle que soit la forme de la boîte et les subtilités qui en résultent, commençons par énoncer les propriétés électroniques de base d'une boîte quantique. A l'intérieur de la boîte quantique, le confinement des électrons dans les trois directions de l'espace se traduit par un spectre discret des états électroniques. En

revanche, dans le puits quantique ultra-mince que constitue la couche de mouillage d'InAs (Fig. I.1.2), l'invariance par translation dans le plan des couches donne l'existence de quasi-continuum bidimensionnels pour les états électroniques délocalisés dans la couche de mouillage. Enfin, la matrice de GaAs est caractérisée par une densité d'états tridimensionnelle.

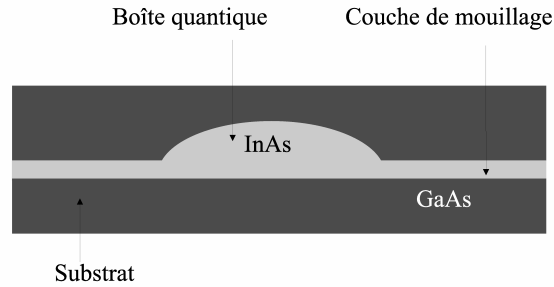


FIG. I.1.2 – Schéma d'une boîte quantique en InAs sur une couche de mouillage en InAs, dans une matrice de GaAs.

I.1.2 Spectre des états électroniques dans une boîte quantique

I.1.2.1 Etats électroniques d'un semiconducteur massif

Dans un semiconducteur massif, les états électroniques sont décrits par des états de Bloch $|n, \vec{k}, \sigma\rangle$:

$$\langle \vec{r}, \sigma | n, \vec{k}, \sigma \rangle = \exp(i \vec{k} \cdot \vec{r}) u_{n, \vec{k}}(\vec{r}) \quad (\text{I.1.1})$$

où n est l'indice de bande, \vec{k} le nombre quantique translationnel résultant de l'invariance par translation du cristal semiconducteur, σ la projection du spin de l'électron suivant un axe de quantification et $u_{n, \vec{k}}$ une fonction périodique dans l'espace réel souvent appelée "fonction atomique", puisque c'est elle qui contient toute l'information sur la nature et l'arrangement des éléments chimiques du cristal.

Pour les semiconducteurs à gap direct tels que GaAs et InAs, la description des propriétés optiques ne nécessite que la connaissance des états électroniques au voisinage du centre de la première zone de Brillouin. Dans les semiconducteurs III-V qui cristallisent dans la structure blende de zinc, les états électroniques en centre de zone se transforment comme des orbitales atomiques s , p_x , p_y et p_z lorsqu'on leur applique les transformations laissant invariant le tétraèdre local de la structure blende de zinc [13]. En utilisant les notations de physique

atomique pour les orbitales atomiques, les états de conduction en centre de zone $|c, \vec{k} = \vec{0}, \sigma\rangle$ sont décrits dans une base $\{|\tilde{S}, \sigma\rangle\}$; de même, les états de valence en centre de zone $|v, \vec{k} = \vec{0}, \sigma\rangle$ sont décrits dans la base $\{|\tilde{X}, \sigma\rangle, |\tilde{Y}, \sigma\rangle, |\tilde{Z}, \sigma\rangle\}$ avec $\sigma = \uparrow$ ou \downarrow .

L'interaction spin-orbite modifie cette première approche où les degrés de liberté d'espace et de spin sont traités séparément. Dans les semiconducteurs III-V, le couplage spin-orbite est important et il provient essentiellement de l'anion dont le numéro atomique élevé rend sa contribution dominante dans la constante de couplage λ du hamiltonien d'interaction spin-orbite $H_{SO} = \lambda \vec{L} \cdot \vec{\sigma}$ [13], où \vec{L} est le moment cinétique orbital et $\vec{\sigma}$ le moment cinétique de spin. Pour la description des états électroniques au voisinage du centre de zone et le calcul des différentes masses effectives, il est alors commode de travailler dans une base où J^2 et J_z sont diagonaux puisque H_{SO} commute avec le moment cinétique total $\vec{J} = \vec{L} + \vec{\sigma}$. Les états électroniques du semiconducteur massif en centre de zone sont alors décrits par des états $\{|\alpha, J, J_z\rangle\}$ où $\alpha = c$ ou v pour les états de conduction et de valence.

Pour les états de conduction de moment cinétique orbital nul $L=0$, le couplage spin-orbite n'a pas d'effet. Les deux états de conduction, appelés $|u_1\rangle$ et $|u_2\rangle$ [14], sont inchangés et gardent la même énergie E_g :

$$|u_1\rangle = \left|c, \frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\right\rangle = i|\tilde{S}, \uparrow\rangle \quad (\text{I.1.2})$$

$$|u_2\rangle = \left|c, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle = i|\tilde{S}, \downarrow\rangle \quad (\text{I.1.3})$$

Pour les états de valence de moment cinétique orbital $L=1$, le couplage spin-orbite lève partiellement la dégénérescence des six états. Les états du quadruplet $J = \frac{3}{2}$ gardent une énergie nulle et ils s'écrivent :

$$|u_3\rangle = \left|v, \frac{3}{2}, +\frac{1}{2}\right\rangle = +\sqrt{\frac{1}{6}}|\tilde{X} + i\tilde{Y}, \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}}|\tilde{Z}, \uparrow\rangle \quad (\text{I.1.4})$$

$$|u_4\rangle = \left|v, \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle = -\sqrt{\frac{1}{6}}|\tilde{X} - i\tilde{Y}, \uparrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}}|\tilde{Z}, \downarrow\rangle \quad (\text{I.1.5})$$

$$|u_5\rangle = \left|v, \frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\right\rangle = +\sqrt{\frac{1}{2}}|\tilde{X} + i\tilde{Y}, \uparrow\rangle \quad (\text{I.1.6})$$

$$|u_6\rangle = \left|v, \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\right\rangle = -\sqrt{\frac{1}{2}}|\tilde{X} - i\tilde{Y}, \downarrow\rangle \quad (\text{I.1.7})$$

où les états $|u_3\rangle$ et $|u_4\rangle$ correspondent aux états de valence légers et $|u_5\rangle$ et $|u_6\rangle$ aux états de valence lourds.

Les deux derniers états $|u_7\rangle$ et $|u_8\rangle$ forment le doublet $J = \frac{1}{2}$ des états de

valence :

$$|u_7\rangle = \left| v, \frac{1}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle = +\sqrt{\frac{1}{3}}|\tilde{X} + i\tilde{Y}, \downarrow\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}}|\tilde{Z}, \uparrow\rangle \quad (\text{I.1.8})$$

$$|u_8\rangle = \left| v, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle = -\sqrt{\frac{1}{3}}|\tilde{X} - i\tilde{Y}, \uparrow\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}}|\tilde{Z}, \downarrow\rangle \quad (\text{I.1.9})$$

Ces états sont décalés vers les basses énergies d'une quantité Δ . Dans GaAs d'énergie de bande interdite $E_g \sim 1.45$ eV, le dédoublement spin-orbite des états de valence propulse les états de $J=\frac{1}{2}$ vers les basses énergies puisque $\Delta \sim 0.35$ eV, soit un rapport $\Delta/E_g \sim 0.25$. En raison de l'importance de ce décalage en énergie, nous ne considérerons dans la suite que les états de valence lourds et légers.

Notons que sur l'ensemble de ces états, seuls les états de conduction ($|u_1\rangle$ et $|u_2\rangle$) et les états de valence lourds ($|u_5\rangle$ et $|u_6\rangle$) gardent des degrés de liberté d'espace et de spin séparables. Ce sont précisément ces états électroniques qui joueront le rôle prédominant dans la description des transitions optiques interbandes d'une boîte quantique.

I.1.2.2 Etats électroniques de la couche de mouillage

Dans les hétérostructures composées de couches minces de matériaux semi-conducteurs différents, les états électroniques sont souvent décrits dans l'approximation de la fonction "enveloppe", qui consiste à découpler les variations à petite et grande échelles de la fonction d'onde des électrons. De manière générale, un état électronique $|\psi\rangle$ dans une nanostructure semiconductrice est décrit dans une base d'états qui s'écrivent, en représentation $\{|\vec{r}'\rangle\}$, sous la forme :

$$\chi_i(\vec{r}')u_i(\vec{r}') \quad (\text{I.1.10})$$

où $\chi_i(\vec{r}')$ est la fonction d'onde "enveloppe" associée au spineur à deux dimensions $u_i(\vec{r}')$, qui correspond à l'état de Bloch en centre de zone $|u_i\rangle$ en représentation $\{|\vec{r}'\rangle\}$. Alors que la partie périodique d'un état de Bloch a des variations rapides à l'échelle d'une cellule élémentaire, la fonction d'onde "enveloppe" $\chi_i(\vec{r}')$ a des variations lentes à cette échelle et elle décrit le confinement des porteurs dans la nanostructure. Dans la limite d'une structure infiniment étendue, la fonction d'onde "enveloppe" n'est autre que l'exponentielle $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}')$ de l'état de Bloch décrit par la fonction d'onde (I.1.1). Dans la suite, pour caractériser le confinement des porteurs dans la nanostructure, nous parlerons par abus de langage d'état "enveloppe" $|\chi_i\rangle$, tel que $\langle \vec{r}' | \chi_i \rangle = \chi_i(\vec{r}')$.

Dans le puits quantique ultramince que constitue la couche de mouillage (Fig. I.1.2), les états "enveloppes" $|p, k_x, k_y\rangle$ sont définis par les nombres quantiques translationnels k_x et k_y , qui caractérisent l'invariance par translation dans

L (MC)	1	1.7	2
$\Delta_{5,6}(1)$ (meV)	235	180	160
$\Delta_{1,2}(1)$ (meV)	625	535	495

TAB. I.1 – Energie de confinement du premier état lié des états de valence lourds $|u_5\rangle$ et $|u_6\rangle$ et des états de conduction $|u_1\rangle$ et $|u_2\rangle$ pour différentes épaisseurs de la couche de mouillage. Pour les états de valence et conduction, la hauteur de barrière est respectivement de -288 et 697 meV, et la masse effective suivant (Oz) respectivement de $-0.34m_0$ et $0.067m_0$ [15]. Ces masses effectives incorporent de façon phénoménologique les effets importants de contrainte dans la couche de mouillage. Un calcul microscopique complet des effets de contrainte et de confinement peut être réalisé dans le cadre d'un modèle de pseudo-potentiels [12].

le plan, et un nombre quantique p ($p=1,2,\dots$), qui rend compte du confinement des porteurs suivant l'axe de croissance (Oz) [14] :

$$\langle \vec{r} | p, k_x, k_y \rangle = \chi_p(z) \exp(i(k_x x + k_y y)) \quad (\text{I.1.11})$$

A chaque valeur du nombre quantique p est associé un quasi-continuum bidimensionnel d'états électroniques dont la densité d'états est donnée par :

$$\rho_{i,p}(E) = \frac{m_i^{xy} S}{2\pi \hbar^2} \Theta_{i,p}(E) \quad (\text{I.1.12})$$

où m_i^{xy} est la masse effective des porteurs dans le plan, S la surface de la couche de mouillage, $\Theta_{i,p}(E)$ est définie par $\Theta(E - E_g - \Delta_i(p))$ pour les états de conduction (où E_g est le gap du matériau puits) et $\Theta(\Delta_i(p) - E)$ pour les états de valence, avec Θ la fonction de Heavyside et $\Delta_i(p)$ l'énergie de confinement, qui vaudrait $p^2 \hbar^2 \pi^2 / 2m_i^z L^2$ dans l'approximation d'une hauteur de barrière infinie d'un puits quantique d'épaisseur L .

Dans le système InAs/GaAs, les états de valence lourds $|u_5\rangle$ et $|u_6\rangle$ ont une masse effective suivant (Oz) quatre fois plus grande que les états de valence légers $|u_3\rangle$ et $|u_4\rangle$ ($m_{5,6}^z/m_{3,4}^z \sim 4$). L'effet important du confinement en (Oz) est de lever la dégénérescence des états de valence de sorte que les excitations optiques interbandes de plus basse énergie font intervenir les états lourds de valence.

L'existence d'une invariance par translation dans le plan pour la couche de mouillage est remise en cause par la rugosité de ce puits quantique qui fait localement une ou deux couches atomiques (Fig. I.1.1(a)), avec une valeur moyenne de 1.7 monocouches au seuil de nucléation des boîtes quantiques. La présence de terrasses de quelques monocouches d'épaisseur conduit à la localisation partielle des états électroniques pour lesquels k_x et k_y ne sont plus de bons nombres quantiques. Le quasi-continuum d'états bidimensionnels de la

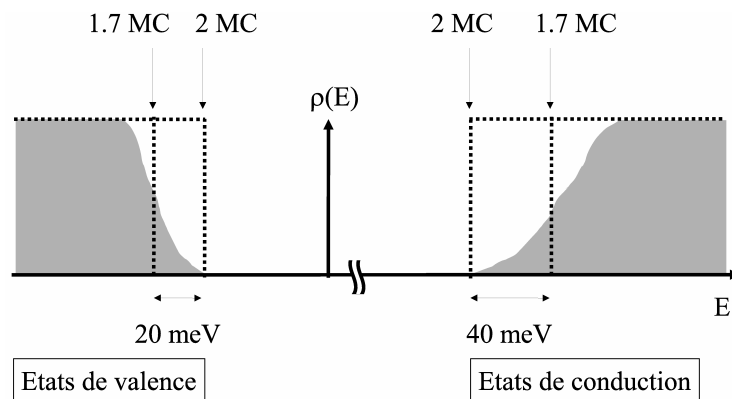


FIG. I.1.3 – Densité d'états de la couche de mouillage rugueuse d'épaisseur moyenne 1.7 monocouches. En pointillés sont représentées les densités d'états de puits quantiques sans défaut, d'épaisseurs 1.7MC et 2MC.

couche de mouillage d'épaisseur moyenne L considérée ci-dessus est remplacé par une distribution d'états plus ou moins localisés. L'énergie de confinement des états liés dans le défaut dépend du rapport entre leur taille et la longueur de de Broglie des porteurs dans le plan $\lambda_B = h / \sqrt{2m^{xy}\tilde{E}}$, où \tilde{E} est la hauteur de barrière effective du défaut d'une mono-couche atomique de hauteur [14]. En conséquence, l'étalement de la fonction d'onde électronique est important dans la limite des petits et des grands défauts, pour lesquels l'énergie des états électroniques est respectivement égale à celle d'un puits quantique de deux et une monocouche atomique (Tableau I.1). Pour la densité d'états, l'effet de la rugosité est la suppression du profil abrupt en marche d'escalier associé à un puits quantique sans défaut [16]. La localisation partielle des états électroniques se traduit par des queues de densité d'états, dont le point d'inflexion correspond en première approximation à l'énergie de confinement du puits quantique effectif d'épaisseur 1.7 monocouches. L'extension spectrale de ces états localisés est de l'ordre de quelques dizaines de meV d'après les valeurs du tableau (I.1).

I.1.2.3 Etats électroniques d'une boîte quantique

Alors que les terrasses de la couche de mouillage donnent lieu à un confinement faible des électrons, les îlots d'InAs décrits sur la figure I.1.1(a) forment des boîtes quantiques où les porteurs sont fortement confinés dans les trois directions de l'espace. Dans ce cas, un spectre discret associé aux états liés dans la boîte quantique apparaît en-dessous du quasi-continuum bidimensionnel des états électroniques de la couche de mouillage. La discrétisation du spectre électronique dans une boîte quantique est un des aspects fondamentaux de la physique de ces nanostructures. En particulier, elle est à l'origine de l'analogie réalisée avec

les systèmes atomiques, analogie qui a conduit au modèle du "macro-atome" ou "atome artificiel" pour décrire les propriétés électroniques et optiques d'une boîte quantique.

Les boîtes quantiques InAs/GaAs forment un système modèle pour étudier le régime de confinement fort des électrons en raison des valeurs élevées des énergies de confinement. En effet, pour une boîte quantique de 20 nm de diamètre et de 1.5 nm de hauteur [17], il y a deux états de conduction liés d'énergie de confinement 420 et 475 meV, et deux états de valence liés d'énergie de confinement 135 et 165 meV. De fait, la séparation en énergie entre le premier état confiné dans la boîte quantique et le quasi-continuum de la couche de mouillage est de l'ordre de 115 meV pour les états de conduction, et 45 meV pour ceux de valence (Fig. I.1.4), valeurs supérieures à kT même à température ambiante ($kT \sim 30$ meV pour $T=300$ K).

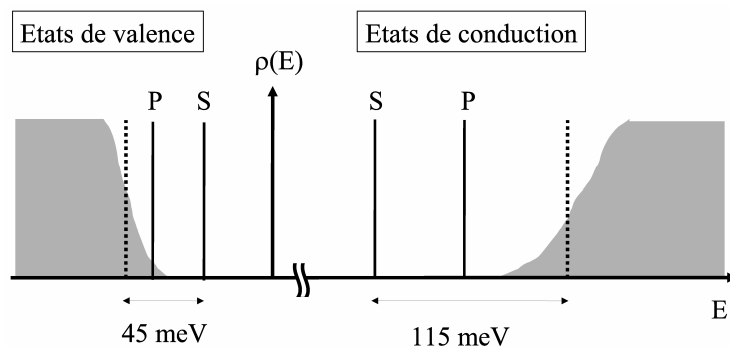


FIG. I.1.4 – Densité d'états d'une boîte quantique de diamètre 20 nm et de hauteur 1.5 nm et de la couche de mouillage rugueuse d'épaisseur moyenne 1.7 monocouches.

La nomenclature des états discrets d'une boîte quantique reprend celle habituellement utilisée en physique atomique. A ce stade de la discussion, il est important d'analyser la symétrie des boîtes quantiques et de distinguer le cas où le confinement est à symétrie sphérique (boîtes quantiques synthétisées par chimie douce, souvent appelées nanocristaux) et le cas où le confinement est à symétrie cylindrique (boîtes quantiques épitaxiées). Pour les nanocristaux, les états "enveloppes" liés $|n, l, m\rangle$ peuvent être décrits par les mêmes nombres quantiques que pour les électrons d'un atome, à savoir le nombre quantique principal n , et les nombres quantiques l et m , respectivement valeurs propres des opérateurs L^2 ($L^2|n, l, m\rangle = l(l+1)\hbar^2|n, l, m\rangle$) et L_z ($L_z|n, l, m\rangle = m\hbar|n, l, m\rangle$).

Pour les boîtes quantiques épitaxiées, la symétrie sphérique est brisée de sorte que le moment cinétique orbital total l n'est plus un bon nombre quantique. En revanche, en première approximation, l'invariance par rotation autour de l'axe de croissance est conservée ce qui confère à la boîte quantique une symétrie

cylindrique où la projection du moment cinétique orbital suivant (Oz) m reste un bon nombre quantique. La non-séparabilité du potentiel de confinement $V(\rho, z)$ d'une boîte quantique couple les degrés de liberté dans le plan et suivant l'axe de croissance. Si $V(\rho, z)$ pouvait se décomposer en $V_1(z)+V_2(\rho)$ avec $V_1(z)$ le potentiel de confinement d'un puits quantique et $V_2(\rho)$ un potentiel parabolique pour le mouvement latéral, les états propres du système prendraient la forme :

$$\langle \vec{r} | p, n, m \rangle = \chi_p(z) \phi_{n,m}(\rho, \theta) \quad (\text{I.1.13})$$

où p ($p=1,2,\dots$) est le nombre quantique d'un état lié de puits quantique $V_1(z)$ (Eq. I.1.11) et n et m les nombres quantiques introduits dans la description de l'oscillateur harmonique à deux dimensions où n est le nombre quantique principal ($n=0,1,\dots$) et m est la projection du moment cinétique orbital suivant (Oz) dont les valeurs possibles sont $n, n-2, n-4, \dots, -n$ [18]. Une base d'états $|p, n, m\rangle$ tels que ceux de l'équation (I.1.13) est mal adaptée à la description des états de boîte quantique car ces états donnent, entre autre, une importante surestimation de l'énergie de confinement.

Le problème de la non-séparabilité du potentiel de confinement peut être partiellement contourné dans la mesure où une boîte quantique épitaxiée est une nanostructure aplatie ($h/D \sim 0.1$), de sorte que des fonctions d'onde séparables en (ρ, θ) et (z) permettent d'obtenir une bonne approximation des états liés de la boîte quantique. Deux approches sont possibles : on peut partir des états propres d'un puits quantique effectif de même épaisseur que l'ensemble boîte quantique et couche de mouillage, écrire la fonction d'onde sous la forme $\chi_p(z)\psi(\rho, \theta)$ et résoudre ensuite l'équation de Schödinger effective dans le plan avec un potentiel de confinement moyenné en z [15]. Ou alors, on peut partir des états propres de l'oscillateur harmonique à deux dimensions, écrire la fonction d'onde sous la forme $\phi_{n,m}(\rho, \theta)\psi(z)$ et résoudre ensuite l'équation de Schödinger effective suivant z avec un potentiel de confinement moyenné dans le plan. Un dernier éclairage sur la structure des états liés d'une boîte quantique peut être obtenu en examinant les fonctions d'essais utilisées dans les méthodes variationnelles [17, 19, 20]. Pour les premiers états liés d'une boîte quantique, une excellente approximation des états confinés est obtenue avec des fonctions d'essai séparables en (ρ, θ) et (z) de la forme :

$$f(\rho, \theta, z) = \phi_{n,m}(\rho, \theta) \frac{1}{\sqrt{\pi d_z}} \exp\left(-\frac{(z - z_0)^2}{2d_z^2}\right) \quad (\text{I.1.14})$$

où d_z est l'extension de la fonction d'onde suivant (Oz) et où les fonctions $\phi_{n,m}(\rho, \theta)$ ne sont autres que les fonctions d'onde de l'oscillateur harmonique à deux dimensions, dont on rappelle les expressions pour les états de plus basse

énergie [18] :

$$\phi_{0,0}(\rho, \theta) = \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{\beta^2 \rho^2}{2}\right) \quad (\text{I.1.15})$$

$$\phi_{1,\pm 1}(\rho, \theta) = \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{\beta^2 \rho^2}{2}\right) \beta \rho \exp(\pm i\theta) \quad (\text{I.1.16})$$

Du point de vue des énergies de confinement, comme la hauteur de la boîte quantique est petite devant son diamètre ($h/D \sim 0.1$), l'existence d'un noeud suivant (Oz) conduit à une énergie de confinement plus élevée que lorsque la fonction d'onde $\phi_{n,m}(\rho, \theta)$ s'annule dans le plan. En conséquence, le rapport d'aspect d'une boîte quantique épitaxiée se traduit par une hiérarchie dans le spectre énergétique où les premiers états liés, qui n'ont pas de noeud suivant (Oz), peuvent être repérés par les nombres quantiques de l'oscillateur harmonique [21]. Pour $n=0$, on a $m=0$: il s'agit d'un état "enveloppe" de type S noté dans la suite $|S\rangle$. Pour $n=1$, on a les deux valeurs $m=+1$ et $m=-1$: il s'agit d'états "enveloppes" de type P et on adoptera la notation $|P^\pm\rangle$. Dans la suite, nous n'aurons besoin que de ces deux types d'états pour décrire les propriétés électroniques et optiques d'une boîte quantique.

Enfin, nous souhaitons attirer l'attention du lecteur sur le fait que dans le cas d'une boîte quantique avec un potentiel de confinement cylindrique, les états "enveloppes" de type S et P sont associés aux valeurs propres 0 et ± 1 de L_z , moment cinétique orbital suivant (Oz), alors que dans un atome, cette nomenclature se rapporte à la valeur propre l du moment cinétique orbital total L . Par ailleurs, la dégénérescence d'un état P est seulement de deux au lieu de trois pour un atome. Ceci peut être vu comme une conséquence de la forme de la boîte quantique, atome artificiel aplati dont l'état $|n, l = 1, m = 0\rangle$ est rejeté vers les hautes énergies à cause du noeud suivant (Oz) de l'harmonique sphérique Y_1^0 [18].

I.1.3 Réduction à un système à deux niveaux

I.1.3.1 Etats de paire électron-trou

Les boîtes quantiques considérées dans ce mémoire sont non-dopées, et l'état $|\phi_0\rangle$ en l'absence d'excitation élémentaire correspond à une configuration du système où tous les électrons sont dans les états de valence et aucun état de conduction n'est occupé. Les excitations élémentaires d'une boîte quantique neutre peuvent être créées optiquement par des transitions interbandes, qui font passer des électrons des états liés de valence vers les états liés de conduction. Sur la figure I.1.5(a), nous avons indiqué l'excitation de plus basse énergie qui correspond à la promotion d'un électron de l'état "enveloppe" $|S\rangle$ de valence vers l'état "enveloppe" $|S\rangle$ de conduction. Dans cette représentation (notée \mathfrak{R}_{cv}

dans la suite), la description du système fait intervenir 1 électron sur un état de conduction et $N-1$ électrons répartis sur l'ensemble des états de valence. En revanche, dans une boîte quantique chargée une fois négativement avec $N+1$ électrons, l'état $|\phi_0\rangle$ correspondrait à N électrons dans les états de valence et 1 électron sur l'état "enveloppe" $|S\rangle$ de conduction, et les excitations de plus basse énergie seraient obtenues en faisant passer l'électron vers des états liés de conduction de plus haute énergie. C'est cette dernière configuration qui est la plus proche de celle d'un atome et on notera la différence avec les excitations d'une boîte quantique neutre, que nous allons considérer dans la suite de ce mémoire.

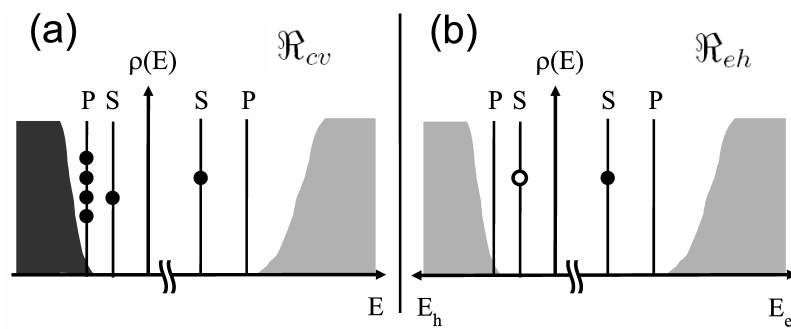


FIG. I.1.5 – Excitation de plus basse énergie en représentation \mathcal{R}_{cv} électrons de conduction/électrons de valence (a), et en représentation \mathcal{R}_{eh} électrons de conduction/trous (b).

En physique du solide, la description d'une mer d'électrons de valence privée d'un électron se fait par l'usage de la quasi-particule trou, dont l'ensemble des paramètres (charge, énergie, masse effective, moment cinétique orbital et de spin) est obtenu en changeant le signe des paramètres de l'état de valence vide associé [13]. L'intérêt de cette quasi-particule est d'aboutir à une description des excitations du système à l'aide d'états de paire électron-trou, i.e. dans une nouvelle représentation, notée \mathcal{R}_{eh} dans la suite (Fig. I.1.5(b)).

Pour les états dont la partie atomique correspond aux états de valence lourds décrits page 10, la correspondance est la suivante :

$$|u_5\rangle = \left| v, \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle = +\sqrt{\frac{1}{2}} |\tilde{X} + i\tilde{Y}, \uparrow\rangle \Rightarrow |hh \downarrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \quad (\text{I.1.17})$$

$$|u_6\rangle = \left| v, \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle = -\sqrt{\frac{1}{2}} |\tilde{X} - i\tilde{Y}, \downarrow\rangle \Rightarrow |hh \uparrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle \quad (\text{I.1.18})$$

Pour les états de conduction, on adoptera la notation :

$$|e \uparrow\rangle = |u_1\rangle = \left|c, \frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\right\rangle = i|\tilde{S}, \uparrow\rangle \quad (\text{I.1.19})$$

$$|e \downarrow\rangle = |u_2\rangle = \left|c, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle = i|\tilde{S}, \downarrow\rangle \quad (\text{I.1.20})$$

Le traitement de l'interaction coulombienne entre électron et trou ne peut pas être effectué de manière identique dans les puits quantiques et dans les boîtes quantiques. Dans un puits quantique, les excitations élémentaires sont décrites par des excitons, états de paire où électron et trou sont corrélés par l'interaction coulombienne attractive [14]. Dans les boîtes quantiques, il est important d'établir une hiérarchie entre énergie de liaison coulombienne de la paire électron-trou et énergies de confinement. La rugosité des interfaces des puits quantiques conduit à la formation de boîtes quantiques au niveau des défauts d'interface (cf. page 13), et ces boîtes quantiques sont dans un régime de confinement faible où l'interaction coulombienne est dominante : le centre de masse de la paire électron-trou est localisé par le défaut d'interface, de sorte qu'un état de paire électron-trou peut être décrit comme un exciton confiné dans la boîte quantique. Dans les boîtes quantiques auto-organisées telles que les boîtes quantiques InAs/GaAs, l'énergie de liaison coulombienne entre électron et trou apporte une faible correction à l'énergie de la paire électron-trou, qui est essentiellement déterminée par le confinement : dans ce régime de confinement fort, c'est en première approximation la localisation de l'électron et du trou dans la boîte quantique qui forme l'état de paire électron-trou et non l'interaction coulombienne comme dans le régime de confinement faible. Dans ce mémoire consacré à l'étude de boîtes quantiques InAs/GaAs, nous parlerons d'état de paire électron-trou plutôt que d'excitons et nous exploiterons la possibilité de décrire les excitations élémentaires de notre système dans des schémas à une particule (Fig. I.1.5), puisque électron et trou sont faiblement corrélés par l'interaction coulombienne.

I.1.3.2 Règles de sélection pour l'interaction dipolaire électrique

Les règles de sélection des transitions optiques peuvent être déterminées en représentation \mathfrak{R}_{cv} à partir des probabilités de transition d'un état de valence vers un état de conduction sous l'effet de l'interaction dipolaire électrique :

$$H_I = \frac{e}{m_0}(\vec{A} \cdot \vec{p}) \quad (\text{I.1.21})$$

où e est la charge élémentaire, m_0 la masse de l'électron libre, \vec{A} est le potentiel vecteur associé au champ électromagnétique classique et \vec{p} l'opérateur impulsion.

Dans le formalisme de la fonction "enveloppe", la probabilité de transition d'un état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$ se scinde en deux morceaux à cause de

l'action de l'opérateur impulsion sur un état factorisé en une partie "enveloppe" et une partie état de Bloch en centre de zone (Eq. I.1.10) :

$$\langle f|H_I|i\rangle \sim \frac{e}{m}\vec{A}\cdot\langle\chi_f|\vec{p}|\chi_i\rangle\cdot\langle u_f|u_i\rangle \quad (\text{I.1.22})$$

$$+ \frac{e}{m}\vec{A}\cdot\langle\chi_f|\chi_i\rangle\cdot\langle u_f|\vec{p}|u_i\rangle \quad (\text{I.1.23})$$

où les variations spatiales de \vec{A} sont négligées dans l'approximation des grandes longueurs d'onde. Le premier terme correspond aux transitions intrabandes à cause de l'orthogonalité des états $\{|u_i\rangle\}$. Le second terme correspond aux transitions interbandes pour lesquels deux classes de règles de sélection existent [14]. Le produit scalaire des états "enveloppes" $\langle\chi_c|\chi_v\rangle$ interdit les changements de parité, et en particulier les transitions de type $|S\rangle\longrightarrow|P^\pm\rangle$ ou $|P^\pm\rangle\longrightarrow|P^\mp\rangle$ sont interdites. Le produit scalaire entre \vec{A} et l'élément de matrice $\langle u_c|\vec{p}|u_v\rangle$ détermine les règles de sélection en polarisation. Dans le sous-espace des états de conduction et des états lourds de valence $\{|u_1\rangle,|u_2\rangle,|u_5\rangle,|u_6\rangle\}$, seules les transitions $|u_5\rangle\longrightarrow|u_1\rangle$ et $|u_6\rangle\longrightarrow|u_2\rangle$ sont autorisées. Elles sont respectivement associées à des polarisations de la lumière (σ^-) et (σ^+) car les variations de la projection du moment cinétique total suivant (Oz) sont égales à -1 et +1.

En représentation \mathfrak{R}_{eh} , ces règles de sélection en polarisation permettent de caractériser les états de paire électron-trou qui sont couplés à la lumière. Sur les quatre états de paire formés à partir des états $\{|e\uparrow\rangle,|e\downarrow\rangle,|hh\downarrow\rangle,|hh\uparrow\rangle\}$, deux états sont brillants. Ce sont les états propres pour les valeurs propres ± 1 du moment cinétique total suivant (Oz) de la paire électron-trou (J_z^{eh}), et dans la base $|J^{eh}, J_z^{eh}\rangle$ on a :

$$|e\uparrow, hh\downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{4}}|2, -1\rangle - \sqrt{\frac{3}{4}}|1, -1\rangle \quad (\text{I.1.24})$$

$$|e\downarrow, hh\uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{4}}|2, +1\rangle + \sqrt{\frac{3}{4}}|1, +1\rangle \quad (\text{I.1.25})$$

Dans la suite, on adoptera la notation :

$$|e\uparrow, hh\downarrow\rangle \equiv |\widetilde{-1}\rangle \quad (\text{I.1.26})$$

$$|e\downarrow, hh\uparrow\rangle \equiv |\widetilde{+1}\rangle \quad (\text{I.1.27})$$

où ne figure que la valeur du moment cinétique total suivant (Oz) transféré au photon et qui indique le sens de la polarisation circulaire de la lumière (σ^\pm) à laquelle ces états sont couplés. Il s'agit bien évidemment des transitions $|u_5\rangle\longrightarrow|u_1\rangle$ et $|u_6\rangle\longrightarrow|u_2\rangle$ étudiées en représentation \mathfrak{R}_{cv} .

Les deux autres états de paire électron-trou sont noirs, puisque dans la base $|J^{eh}, J_z^{eh}\rangle$ on a :

$$|e\downarrow, hh\downarrow\rangle = |2, -2\rangle \quad (\text{I.1.28})$$

$$|e\uparrow, hh\uparrow\rangle = |2, +2\rangle \quad (\text{I.1.29})$$

et ces états correspondent aux transitions interdites $|u_5\rangle \rightarrow |u_2\rangle$ et $|u_6\rangle \rightarrow |u_1\rangle$. De même, on adoptera la notation :

$$|e \downarrow, hh \downarrow\rangle \equiv |\widetilde{-2}\rangle \quad (\text{I.1.30})$$

$$|e \uparrow, hh \uparrow\rangle \equiv |\widetilde{+2}\rangle \quad (\text{I.1.31})$$

Une synthèse de ces règles de sélection permet la détermination qualitative du spectre d'absorption interbande d'une boîte quantique. L'état de paire électron-trou de plus basse énergie est l'état $|S_e, S_h\rangle |J_z^{eh}\rangle$ qui est quatre fois dégénéré avec deux états brillants ($J_z^{eh} = \pm 1$) et deux états noirs ($J_z^{eh} = \pm 2$). Ensuite, avec la même dégénérescence quatre pour le moment cinétique orbital total de la partie atomique, les états de type $|P_e^+, P_h^-\rangle |J_z^{eh}\rangle$ et $|P_e^-, P_h^+\rangle |J_z^{eh}\rangle$, qui sont dégénérés avec les états noirs $|P_e^+, P_h^+\rangle |J_z^{eh}\rangle$ et $|P_e^-, P_h^-\rangle |J_z^{eh}\rangle$. Enfin nous trouvons les états quasi-bidimensionnels de la couche de mouillage (Fig. I.1.6).

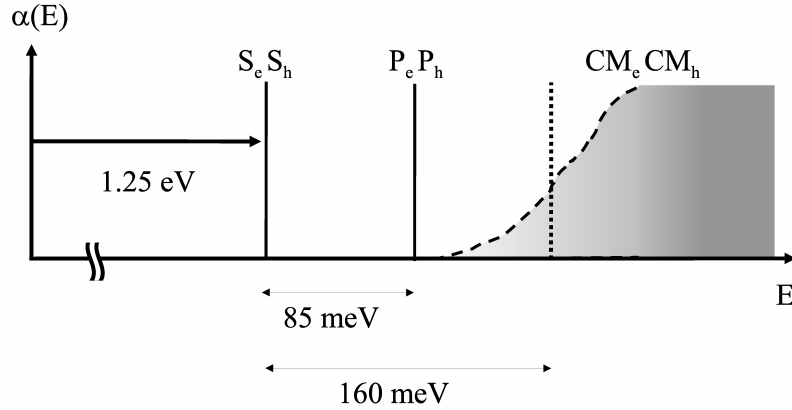


FIG. I.1.6 – Spectre d'absorption d'une boîte quantique en forme de cône tronqué, de diamètre 20 nm et de hauteur 1.5 nm sur une couche de mouillage (CM) rugueuse d'épaisseur moyenne 1.7 monocouches. La ligne verticale en pointillés indique l'énergie de la paire électron-trou de plus basse énergie d'une couche de mouillage sans rugosité d'épaisseur 1.7 monocouches.

En reprenant l'exemple d'une boîte quantique de diamètre 20 nm et de hauteur 1.5 nm sur une couche de mouillage rugueuse d'épaisseur moyenne 1.7 monocouches, plusieurs constatations s'imposent. Tout d'abord, l'état $|S_e, S_h\rangle$ est très bien isolé spectralement des états de paire excités $|P_e, P_h\rangle$, qui sont eux mêmes à 15 meV du seuil d'absorption de la couche de mouillage. Il est important de préciser que, sur la figure I.1.6, est tracée en tirets la densité d'états jointe des états de paire électron-trou de la couche de mouillage rugueuse, sans tenir compte de la force d'oscillateur de ces transitions, qui est proportionnelle au produit scalaire des états "enveloppes" $\langle \chi_e | \chi_h \rangle$. Notamment, si l'électron et le trou sont localisés

sur des défauts différents, la force d'oscillateur de ces transitions est très faible et leur contribution au profil d'absorption de la couche de mouillage est négligeable.

En résumé les états de paire électron-trou confinés dans une boîte quantique présente un spectre discret semblable au spectre électronique dans les atomes. Cette analogie est à la base du modèle de l'atome artificiel. Il existe néanmoins des considérations spécifiques à la physique du solide. En particulier, l'espacement en énergie entre les états discrets est a priori différent de l'énergie des phonons optiques et acoustiques de sorte qu'une inhibition des processus de relaxation assistés par phonon est attendue. Comme l'interaction électron-phonon joue un rôle essentiel dans la dynamique des porteurs dans les semiconducteurs massifs ou les puits quantiques semiconducteurs, il est important de déterminer si tel n'est pas le cas pour les boîtes quantiques, qui apparaissent comme un système modèle en matière condensée pour transposer certains concepts de la physique atomique.

I.1.3.3 Implications du modèle de l'atome artificiel

- *Inhibition du couplage aux phonons*

Dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques, absorption et émission de phonons sont des processus très efficaces pour les phénomènes de relaxation de population ou de cohérence. Le couplage aux phonons optiques longitudinaux (LO) par l'interaction de Fröhlich est à l'origine de processus inélastiques couplant des états électroniques distants d'une trentaine de meV (36 meV dans GaAs et 32 meV dans InAs contraint). Le couplage aux phonons acoustiques longitudinaux (LA) par les potentiels de déformation ou piézo-électrique conduit en revanche à des processus quasi-élastiques qui mettent en jeu des énergies de l'ordre du meV. Dans la limite d'un traitement perturbatif de l'interaction électron-phonon par la règle d'or de Fermi, l'absorption ou l'émission de phonons sont efficaces s'il existe une densité d'états électroniques finaux importante à une distance en énergie correspondant à l'énergie caractéristique d'un phonon. C'est précisément le cas dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques où le spectre des états électroniques se caractérise par la présence de continuums tri- ou bidimensionnel d'états électroniques, respectivement.

La situation est radicalement différente dans une boîte quantique à cause de la discrétisation du spectre et des énergies de confinement mises en jeu (Fig. I.1.6). En effet, l'écart en énergie entre les différents états électroniques du système est, d'une part, grande devant l'énergie caractéristique des phonons acoustiques (de l'ordre du meV) et, d'autre part, différente d'un multiple de l'énergie d'un phonon optique (de l'ordre d'une trentaine de meV). Le problème de la capture dans les boîtes quantiques à partir des états de la couche de mouillage ainsi que celui de la relaxation entre états liés de la boîte quantique ont été soulevés il y a une quinzaine d'années et une inhibition des processus de relaxation assistée par phonons, ou phonon bottleneck, a été prédite théoriquement [22, 23].

Ce phénomène d'inhibition de la relaxation due aux phonons dans une boîte quantique est un aspect essentiel du modèle de l'atome artificiel dans la mesure où il met en exergue la disparition, dans les nanostructures de boîtes quantiques, d'un des processus de relaxation les plus importants en physique du solide via le couplage aux modes de vibration de la matrice cristalline.

- *Décohérence limitée par la recombinaison radiative*

L'effet de goulot d'étranglement (phonon bottleneck) est une des conséquences de la discrétisation du spectre électronique dans les boîtes quantiques qui touche à la relaxation de population. Dans la continuité de cette hypothèse de travail, une inhibition des processus responsables de la perte de cohérence doit également se produire dans les boîtes quantiques.

En particulier, étant donné la grande séparation spectrale des états de paire électron-trou de partie "enveloppe" $|P_e, P_h\rangle$ et $|S_e, S_h\rangle$ par rapport aux énergies des phonons optiques et acoustiques, il apparaît naturel de considérer, comme un système à deux-niveaux $\{|g\rangle, |e\rangle\}$, la restriction du système à une de ces excitations où l'état excité $|e\rangle$ peut être l'état $|S_e, S_h\rangle$ ou bien l'état $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$ (tout deux dégénérés quatre fois), et l'état $|g\rangle$ est le vide d'excitation élémentaire $|\phi_0\rangle$. Dans le formalisme de la matrice densité associée à un tel système à deux niveaux, le temps caractéristique de relaxation du terme diagonal ρ_{ee} est appelé T_1 , temps de vie de la population, et le temps de relaxation des termes non-diagonaux ρ_{eg} est appelé T_2 , temps de vie de la cohérence ou temps de décohérence. Dans le cadre du modèle de l'atome artificiel avec une inhibition du couplage aux phonons, une boîte quantique apparaît comme un système de physique du solide où la décohérence peut n'être due qu'au seul processus de recombinaison radiative. Dans un tel régime où $T_2=2T_1$, la largeur homogène de la transition est limitée par la largeur naturelle associée au taux d'émission spontanée [24].

Avec un temps de vie radiatif T_1 de l'ordre de la nanoseconde dans une boîte quantique InAs/GaAs et compte tenu de l'existence de sources lasers femtosecondes dans le proche-infrarouge, une boîte quantique apparaît comme un support potentiel au développement d'un traitement quantique de l'information basé sur la manipulation optique cohérente du qu-bit formé par une boîte quantique [25, 26]. Dans ce cas, la condition très restrictive est de pouvoir travailler dans le régime où $T_2 \lesssim 2T_1$, sans quoi le nombre d'opérations réalisables à partir de séquences d'impulsions lasers est d'autant plus limité, et le traitement de l'information d'autant moins fiable que les processus de déphasage sont importants.

En résumé, le développement d'un traitement quantique de l'information sur boîtes quantiques de semiconducteurs est conditionné de manière très stricte par l'inhibition des processus de déphasage assistés par phonons et l'obtention du régime où $T_2 \lesssim 2T_1$.

- *Génération de photons uniques*

Une autre classe d'applications pour l'information quantique repose également sur le modèle de l'atome artificiel et sur la possibilité de pouvoir réduire une boîte quantique unique à un système à deux niveaux. Cependant, il ne s'agit pas d'utiliser la boîte quantique comme qu-bit et d'atteindre la limite où $T_2 \lesssim 2T_1$, mais plutôt d'utiliser simplement la structure de système à deux niveaux qui conduit, avec le principe d'exclusion de Pauli, à une statistique d'émission sub-poissonienne, propriété de base de la génération de photons uniques.

La caractérisation de l'émission de photons uniques repose sur l'observation de l'effet d'anti-bunching dans des expériences de corrélation de photons. Dans ce type d'expérience, seule la structure de système à deux niveaux est requise sans autres contraintes sur les processus microscopiques responsables des phénomènes de relaxation de population et cohérence. En conséquence, pour la distribution de clef en cryptographie quantique, l'émission de photons uniques avec des boîtes quantiques uniques ne repose que sur la discrétisation du spectre et l'obtention d'un système à deux niveaux.

Cependant, dans la perspective de l'utilisation d'une boîte quantique comme source de photons uniques pour un traitement quantique de l'information à base de photons uniques et d'optique linéaire [27], la problématique de l'inhibition des processus de décohérence resurgit car les phénomènes de coalescence de photons indiscernables ont une efficacité qui diminue lorsque les processus de déphasage sont efficaces, ce qui se traduit par une diminution du contraste lorsqu'on s'éloigne de la limite $T_2 \lesssim 2T_1$ [28].

- *Inhibition de la relaxation de spin*

Dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques, la relaxation de spin (ou du pseudo-spin associé à la projection du moment cinétique total suivant (Oz)) peut provenir de plusieurs effets : le couplage spin-orbite (mécanismes Elliott-Yafet, Dyakonov-Perel), l'interaction d'échange (mécanisme Bir-Aronov-Pikus) ou encore l'interaction hyperfine avec les spins nucléaires [29].

Dans les deux premiers cas largement dominants pour les phénomènes de relaxation de spin dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques, les processus de relaxation de spin sont intimement liés aux mécanismes de collisions élastiques. Un lien ténu existe entre le temps de relaxation de spin et le temps de diffusion du nombre quantique translationnel \vec{k} et la correspondance entre ces deux temps s'avère radicalement différente suivant le type de processus microscopiques en jeu, puisque la relaxation de spin est d'autant plus efficace qu'est rapide la diffusion du vecteur d'onde des porteurs dans le cas du mécanisme Elliott-Yafet alors que c'est l'inverse pour le mécanisme Dyakonov-Perel, qui est l'analogie de l'effet de rétrécissement par le mouvement (motional narrowing) décrit en résonance magnétique nucléaire [30].

Dans une boîte quantique, la discrétisation du spectre électronique conduit à nouveau à une remise en cause radicale des processus microscopiques de relaxation

de spin dans la mesure où les processus élastiques de collision et de diffusion du vecteur d'onde perdent complètement leur sens. En conséquence, une inhibition de la relaxation de spin est attendue dans le cadre du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique [31], et le spin des porteurs apparaît comme un degré de liberté bien protégé pour servir de support à la réalisation de qubits à l'état solide [32].

En revanche, l'interaction hyperfine avec les spins nucléaires n'est a priori pas radicalement modifiée pour une boîte quantique et ce processus, de marginal dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques, est susceptible de devenir le mécanisme dominant pour la relaxation du spin de l'électron dans une boîte quantique (le couplage entre les spins nucléaires et le pseudospin du trou est nul dans les semiconducteurs III-V à cause de la symétrie P de la partie atomique des états de valence, cf. page 10). Sous l'effet de l'interaction hyperfine, l'électron peut changer de spin et la conservation du spin total du système {électron+spins nucléaires} est assurée par un transfert de moment cinétique de spin aux noyaux.

En résumé, comme l'interaction hyperfine est négligeable face au couplage spin-orbite et à l'interaction d'échange pour les semiconducteurs massifs et les puits quantiques, et comme ces deux derniers mécanismes sont supposés être inhibés dans une boîte quantique à cause de la discrétisation du spectre, la vision habituellement adoptée dans le cadre du modèle de l'atome artificiel est celle d'une absence de relaxation de spin, phénomène qui vient s'ajouter aux effets de phonon bottleneck et de décohérence limitée par la recombinaison radiative.

- *Génération d'états de Bell intriqués en polarisation*

L'exploitation de la structure fine de la transition fondamentale d'une boîte quantique et de l'effet d'inhibition de la relaxation de spin est particulièrement féconde dans le cadre de la génération de photons uniques.

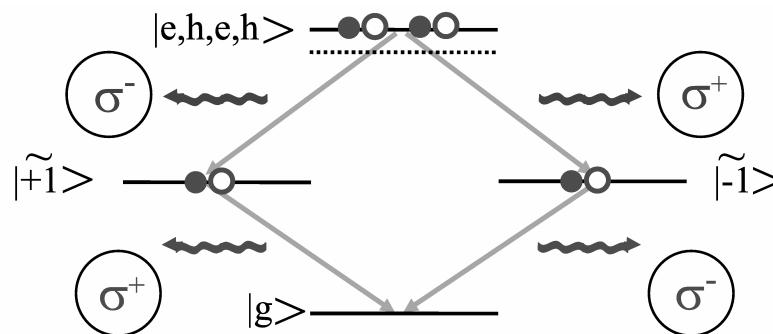


FIG. I.1.7 – Génération d'états de Bell intriqués en polarisation à partir de la cascade entre états à deux paires (biexciton) et états à une paire électron-trou (exciton).

Sur la figure I.1.7 sont indiquées les règles de sélection pour le pompage optique

d'une boîte quantique dans des états à une paire électron-trou et dans l'état à deux paires électron-trou. Avec la terminologie usuelle des excitons, il s'agit des états à un exciton et du biexciton, dont l'énergie de liaison coulombienne décale vers le rouge ou vers le bleu (cas de la figure I.1.7) la transition optique associée à la recombinaison d'une des deux paires électron-trou du biexciton. Lors de la cascade entre les états biexciton-exciton-vide, les photons émis sont dans des polarisations circulaires orthogonales car le biexciton est un état dont la partie atomique a une projection du moment cinétique total suivant (Oz) nulle.

A partir de l'analogie avec la cascade électronique entre niveaux atomiques [33], la production d'états de Bell intriqués en polarisation a été proposée pour la cascade multi-excitonique dans l'atome artificiel formé par une boîte quantique [34]. Dans l'hypothèse où la relaxation de spin est inhibée et où les états $|\widetilde{+1}\rangle$ et $|\widetilde{-1}\rangle$ sont dégénérés, les deux chemins de désexcitation sont indiscernables et les états à deux photons émis par une boîte quantique sont de la forme :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma^-\rangle_1|\sigma^+\rangle_2 + |\sigma^+\rangle_1|\sigma^-\rangle_2) \quad (\text{I.1.32})$$

où 1 indique le premier photon de la cascade émis par le passage biexciton-exciton (photon décalé vers le bleu) et 2 indique le deuxième photon émis lors de la recombinaison radiative de la deuxième paire (photon décalé vers le rouge). La possibilité de disposer d'une source d'états de Bell pompée électriquement, avec un taux de répétition de l'ordre du GHz est une nouvelle motivation pour l'utilisation d'une boîte quantique pour la cryptographie quantique.

I.2 Etats croisés : transition 2D-0D dans le spectre des excitations optiques interbandes

L'existence d'un signal de photoluminescence issu de la recombinaison radiative des états de paire électron-trou de partie "enveloppe" $|S_e, S_h\rangle$ remet en cause la prédiction d'un ralentissement de la relaxation de population dans une boîte quantique. Plus précisément, le rendement radiatif élevé des boîtes quantiques, supérieur à 80% à basse température [35, 36], montre d'une part que les efficacités des processus de *capture* et de recombinaison radiative dans les boîtes quantiques InAs/GaAs sont nettement supérieures à celles des mécanismes de recombinaison non-radiative. D'autre part, en régime de faible excitation, l'observation d'un signal de photoluminescence à l'énergie des états $|S_e, S_h\rangle$ et son absence pour les états excités $|P_e, P_h\rangle$ indique que la phase de *relaxation de population entre états liés* de la boîte quantique est plus rapide que la recombinaison radiative des paires électron-trou. Cette contradiction entre l'observation expérimentale d'une relaxation efficace des porteurs dans les boîtes quantiques et l'effet de phonon bottleneck du modèle de l'atome artificiel a suscité dès le début des années 1990 un intense débat scientifique sur les mécanismes de relaxation dans une boîte quantique.

I.2.1 Spectroscopie d'excitation et quasi-continuum

Une contribution tout à fait essentielle a été apportée par le groupe d'Arakawa de l'Université de Tokyo en 1999 [37]. Dans ce papier, les auteurs étudient par spectroscopie d'excitation de la photoluminescence sur une boîte quantique *unique* le quasi-continuum qui s'étend entre l'état $|S_e, S_h\rangle$ et les états quasi-2D de la couche de mouillage. La présence de ce quasi-continuum avait été remarquée antérieurement dans des expériences sur des ensembles de boîtes quantiques (cf. Fig. I.2.1(a)) mais l'élargissement inhomogène des transitions étudiées constituait un obstacle pour une investigation plus poussée de son origine.

Dans la Ref. [37], Toda *et al.* montrent par des expériences en champ proche optique à basse température, sur une boîte quantique unique InGaAs/GaAs, que ce quasi-continuum est une signature spectroscopique intrinsèque d'une boîte quantique. A l'échelle de la boîte quantique unique (Fig. I.2.1(b)), le signal d'excitation de la photoluminescence détecté sur la transition fondamentale montre des raies fines superposées à un fond très large spectralement, qui débute à 40 meV de l'état $|S_e, S_h\rangle$ et qui augmente lentement jusqu'au seuil d'absorption des états quasi-2D de la couche de mouillage. L'étude en fonction de l'énergie de détection (Fig. I.2.1(c)) indique très clairement que le fond dans le spectre d'excitation de la photoluminescence est une caractéristique propre aux processus à l'origine de la recombinaison radiative dans la boîte quantique.

La position spectrale des raies fines observées dans la fenêtre d'énergie allant

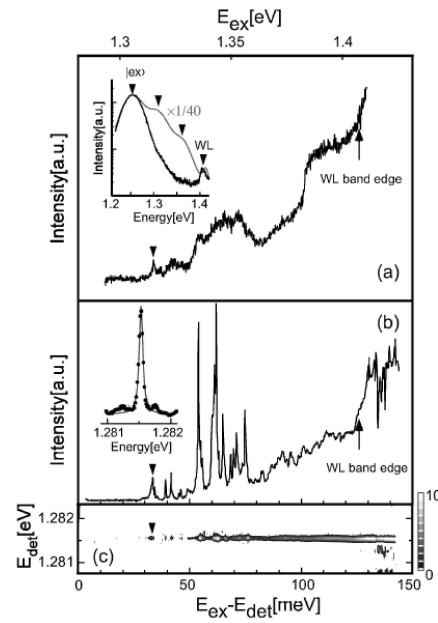


FIG. I.2.1 – Spectres d’excitation de la photoluminescence à 8K, avec une détection sur la transition fondamentale pour un ensemble de boîtes quantiques InGaAs/GaAs (a), sur une boîte quantique unique (b). Variation avec l’énergie de détection du spectre d’excitation sur boîte quantique unique (c), d’après [38].

de 30 à 70 meV est compatible avec les énergies de confinement des états liés d’une boîte quantique. La dispersion en énergie (40 meV) et le nombre des états excités (une douzaine) indique une levée de dégénérescence importante des états $|P_e, P_h\rangle$, l’existence éventuelle d’états liés de type D ($n=2$ dans la nomenclature, page 15, des états de l’oscillateur harmonique à 2D), voire de raies Raman associées à des modes de phonons localisés comme proposé dans la Ref. [37]. En revanche, le fond dans le spectre d’excitation est totalement absent du spectre d’absorption d’une boîte quantique dans le modèle de l’atome artificiel (Fig. I.1.6(a) page 20). La rugosité de la couche de mouillage ne permet d’expliquer ni la présence d’un quasi-continuum en résonance avec les états de paire électron-trou excités, ni l’extension de ce quasi-continuum jusqu’à 40 meV de l’état $|S_e, S_h\rangle$.

Si l’origine de ce quasi-continuum n’a pas été élucidée par Toda *et al.* dans la Ref. [37], son implication pour la relaxation des porteurs dans les boîtes quantiques a immédiatement été notée puisqu’il semble remplir le gap en énergie prédit théoriquement dans le modèle de l’atome artificiel entre les états de la couche de mouillage et les états liés de la boîte quantique.

I.2.2 Photoluminescence up-conversion

Dans le cadre de la thèse de C. Kammerer [38], nous avons apporté une autre contribution importante à la compréhension de la nature de ce quasi-continuum par des expériences d'up-conversion de la photoluminescence de boîtes quantiques InAs/GaAs [39].

Ces expériences sont réalisées sur des échantillons à basse densité surfacique de boîtes quantiques de l'ordre de 10^8 cm^{-2} à 10^9 cm^{-2} . De telles densités surfaciques sont obtenues en exploitant le gradient d'épaisseur d'InAs déposé qui définit trois zones de l'échantillon : une première zone où l'épaisseur d'InAs est sous le seuil de nucléation des boîtes quantiques et où la croissance est bi-dimensionnelle sans boîtes quantiques ; une zone dite dense où l'épaisseur d'InAs est supérieure à 1.7 monocouches et où la densité surfacique de boîtes quantiques est de l'ordre de 10^{11} cm^{-2} ; enfin une zone dite diluée ou frontière, où la croissance Stranski-Krastanow s'amorce et où des boîtes quantiques éparses se sont formées. Dans cette dernière partie de l'échantillon, la distribution statistique des énergies des transitions optiques des boîtes quantiques est plate et s'étend sur 150 meV en dessous de la couche de mouillage [38], ce qui révèle de grandes fluctuations de tailles et de contraintes.

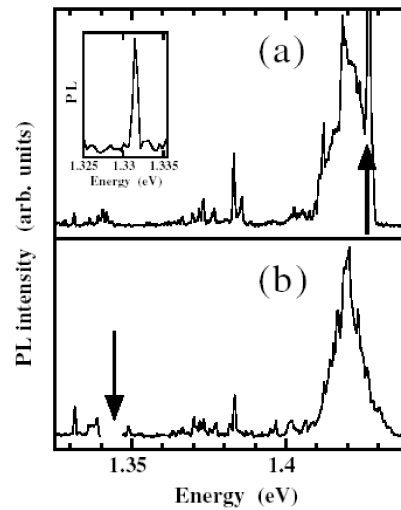


FIG. I.2.2 – Spectroscopie de photoluminescence à 10K, en configuration Stokes avec une excitation à 1.428 eV et une puissance de 300 W.cm^{-2} (a) et en configurations Stokes et anti-Stokes avec une excitation à 1.345 eV et une puissance de 10 kW.cm^{-2} (b). L'encart montre le spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique InAs/GaAs, d'après [40].

D'autre part, dans la zone frontière, la recombinaison radiative dans les rares boîtes quantiques est une perturbation pour la dynamique des porteurs largement

déterminée par la recombinaison radiative dans les états quasi-2D de la couche de mouillage. C'est la raison pour laquelle le signal de photoluminescence peut être détecté simultanément pour la couche de mouillage (à 1.42 eV) et pour les boîtes quantiques (en dessous de 1.42 eV sur la figure I.2.2(a)) lorsque l'énergie d'excitation est à 1.428 eV. Cette situation originale diffère de la configuration standard où des études sur des ensembles denses de boîtes quantiques sont réalisées et pour lesquelles une raie inhomogène gaussienne de luminescence est observée pour les boîtes quantiques et aucun signal de luminescence n'apparaît pour la couche de mouillage. L'intérêt de travailler en zone diluée est précisément de pouvoir étudier des boîtes quantiques uniques qui présentent une grande dispersion des énergies de confinement et ainsi de pouvoir sonder les interactions possibles entre une boîte quantique et le quasi-continuum révélé par les expériences d'excitation de la photoluminescence.

Un exemple frappant d'interaction est présenté sur la figure I.2.2(b) où le laser d'excitation est accordé à une énergie plus basse de 75 meV que l'énergie de la raie d'émission de la couche de mouillage. Dans ce cas, il n'y a plus photo-excitation d'électrons et de trous délocalisés dans la couche de mouillage et pourtant le signal de photoluminescence de la couche de mouillage est toujours observé. D'autre part, toutes les raies fines associées à la recombinaison dans une douzaine de boîtes quantiques différentes sont observables du côté Stokes (basse énergie) et du côté anti-Stokes (haute énergie) par rapport à l'énergie d'excitation. Mise à part la fenêtre de 10 meV autour de l'énergie d'excitation dans laquelle la diffusion élastique du laser masque le signal de photoluminescence, le spectre de photoluminescence excitée sous le quasi-continuum de la couche de mouillage est identique au spectre excité dans les états quasi-2D de la couche de mouillage. Cette comparaison montre que, dans le cas de la figure I.2.2(b), il y a un effet d'up-conversion des porteurs à une énergie plus élevée que les états délocalisés de la couche de mouillage.

Cette interprétation est confirmée par les spectres d'excitation de la photoluminescence (Fig. I.2.3). Pour une détection accordée sur la transition d'une boîte quantique (Fig. I.2.3(b)), la partie du spectre en configuration Stokes montre un signal qui augmente lentement jusqu'au seuil d'absorption dans les états de la couche de mouillage : il s'agit du fond d'absorption caractéristique de la présence d'un quasi-continuum d'états comme pour la figure Fig. I.2.1 ; en revanche, on ne distingue pas de raies fines associées à des états de paire électron-trou excités, ce qui provient vraisemblablement de la petite taille des boîtes quantiques de la zone frontière. Pour la partie du spectre en configuration anti-Stokes, le signal détecté est dans le prolongement du signal de photoluminescence Stokes, indiquant une extension spectrale du quasi-continuum à plus basse énergie. Par ailleurs, si l'énergie de détection est accordée sur la raie d'émission de la couche de mouillage (Fig. I.2.3(a)), le spectre d'excitation de la photoluminescence, entièrement en configuration anti-Stokes, montre le même fond continu que précédem-

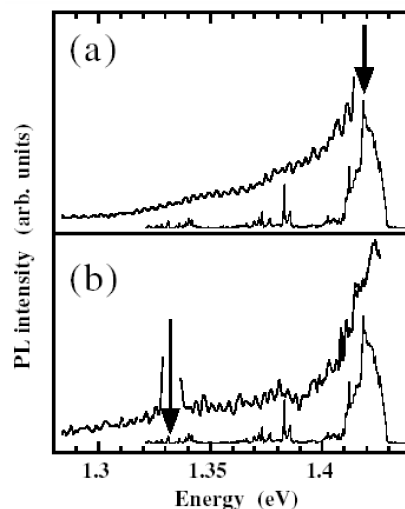


FIG. I.2.3 – Spectroscopie d’excitation de la photoluminescence à 10K, avec une puissance de 10 kW.cm^{-2} : (a) en configuration anti-Stokes avec une détection à 1.42 eV, (b) en configurations anti-Stokes et Stokes avec une détection à 1.345 eV, d’après [40].

ment. La signification de ce résultat est que les états du quasi-continuum s’étendant sous la couche de mouillage sont des états intermédiaires pour les processus d’up-conversion des porteurs. Des études en fonction de la densité d’excitation montrent que l’intensité du signal de photoluminescence suit des lois de puissance d’ordre plus élevé en configuration anti-Stokes, ce qui indique des effets à plusieurs corps, de type Auger, pour les processus d’up-conversion des porteurs [39, 38, 40].

En résumé, le phénomène d’up-conversion, observé par spectroscopie de photoluminescence sur des boîtes quantiques uniques peu confinantes situées en zone frontière, révèle un couplage entre le quasi-continuum s’étendant sous les états quasi-2D de la couche de mouillage et les états de paire électron-trou confinés dans les boîtes quantiques. Ce couplage entraîne un effet d’up-conversion des porteurs à très haute énergie par effet Auger, équivalent à une excitation très non-résonante. Les états du quasi-continuum situés sous les états quasi-2D de la couche de mouillage sont impliqués dans ce processus comme des états intermédiaires permettant une absorption séquentielle de deux photons pour la création d’électrons et de trous à haute énergie. Cet effet observé sur deux échantillons [39, 40] montre l’importance, pour la dynamique électronique dans les boîtes quantiques, des états du quasi-continuum caractérisé pour la première fois par Toda *et al.* [37]. La mise en évidence de son caractère intrinsèque à la fois pour les boîtes quantiques [37] et pour la couche de mouillage [39] place la compréhension de l’origine de ces états dans la problématique de l’identification de la transition entre les états de paire électron-trou quasi-2D de la couche de

mouillage et ceux confinés des boîtes quantiques.

I.2.3 Etats de paire électron-trou 2D/OD

L'origine du quasi-continuum observé en spectroscopie d'excitation de la photoluminescence de boîtes quantiques uniques a été identifiée dans le groupe de R. Ferreira [41]. Son absence dans le modèle de l'atome artificiel présenté dans la partie (I.1) tient au fait que les seuls états de paire électron-trou considérés sont ceux où l'électron et le trou sont, soit tout deux délocalisés dans la couche de mouillage, soit tout deux confinés dans la boîte quantique. Sont omis toutes les combinaisons où l'un des porteurs est localisé dans la boîte quantique tandis que l'autre est délocalisé dans la couche de mouillage (Fig. I.2.4(b)). Ces états de paire, que nous appellerons états croisés, ont une force d'oscillateur faible puisque, d'après l'équation (I.1.23), elle est proportionnelle à $\langle S_e | CM_h \rangle$ ou $\langle S_h | CM_e \rangle$, cependant le fait que l'un des porteurs appartienne à un continuum rend leur contribution importante dans le spectre d'absorption.

Sur la figure I.2.4(a) est représenté le spectre d'absorption interbande d'une couche de mouillage calculé avec (trait plein) et sans (pointillés) boîtes quantiques [41]. La prise en considération de ces états rend compte de l'existence d'un quasi-continuum s'étendant entre l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ et les états quasi-2D de la couche de mouillage. Plus précisément, le premier quasi-continuum observé est celui associé aux états de paire où le trou est délocalisé dans la couche de mouillage. Comme l'énergie de confinement du trou est plus faible que celle de l'électron, les états excités $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$ sont en résonance avec ce premier quasi-continuum. La comparaison avec la figure I.2.1 montre que le quasi-continuum des états croisés présente les caractéristiques observées sur les spectres d'excitation de la photoluminescence : extension jusqu'à quelques dizaines de meV de l'état fondamental et résonance avec les états excités.

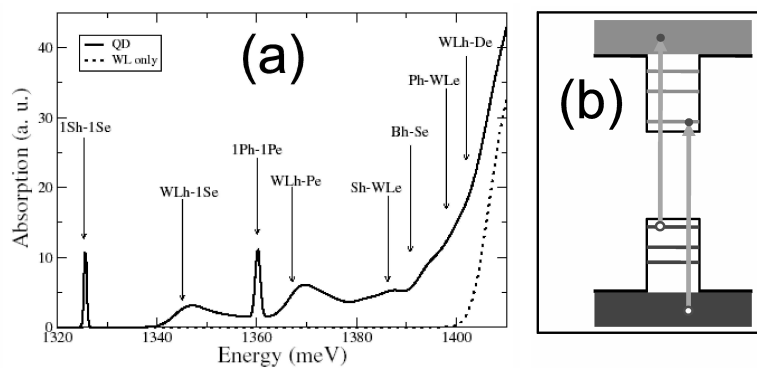


FIG. I.2.4 – Absorption d'une boîte quantique montrant la transition 2D-0D dans le spectre des excitations optiques interbandes, d'après [42].

C'est donc une propriété intrinsèque à un état de paire qui explique la présence du fond dans le spectre d'absorption interbande de notre système. Dans le cas d'une boîte quantique dopée et de son spectre d'absorption intra-bande, les excitations sont au contraire décrites par des états à un électron et il n'est plus du tout question d'états de paire croisés. En conséquence, le spectre des transitions optiques interbandes d'une boîte quantique montre une transition entre des états quasi-2D et des états 0D, transition associée à des états croisés 2D-0D. Cette transition de la dimensionnalité des états observée dans le domaine spectral est la contre-partie de l'effet spatial de morphologie d'une boîte quantique épitaxiée puisqu'elle repose sur le puits quantique ultra-mince de la couche de mouillage. Cette propriété est a priori absente pour les boîtes quantiques synthétisées chimiquement, appelées nanocristaux, quand bien même un fond continu a été également récemment observé par spectroscopie d'excitation de la photoluminescence dans ce système [42].

Un commentaire important s'impose concernant le phénomène d'up-conversion des porteurs dans les boîtes quantiques uniques InAs/GaAs. Comme le quasi-continuum des états croisés a une densité d'état nulle à l'énergie de l'état $|S_e, S_h\rangle$, le signal de photoluminescence anti-Stokes sur boîte quantique unique implique une up-conversion des porteurs via des états croisés d'autres boîtes quantiques. Cet effet, caractérisé sur boîte quantique unique (Fig. I.2.2) n'en reste pas moins un effet collectif où les états croisés de toutes les boîtes quantiques pompées par le laser participent à l'up-conversion des porteurs à haute énergie, ensuite la relaxation via les états quasi-2D de la couche de mouillage conduit au peuplement des états $|S_e, S_h\rangle$.

I.2.4 Conclusion

L'existence des états croisés appelle une reconsidération profonde du problème de la capture assistée par phonons dans une boîte quantique, puisque le quasi-continuum des états croisés garantit l'existence d'états de paire électron-trou à des énergies intermédiaires entre les états délocalisés de la couche de mouillage et les états liés de la boîte quantique. En ce qui concerne la relaxation de population intra-boîte entre états liés, l'annulation de la densité d'états croisés à l'énergie de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ impose une limite au mécanisme de relaxation de paires électron-trou par une cascade d'émissions de phonons. Ce problème est d'autant plus criant dans les boîtes quantiques de grand diamètre où même les premiers états excités $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$ peuvent ne pas être en résonance avec les états croisés [43]. Nous verrons dans la partie (I.4) que l'existence d'un couplage fort exciton-phonon LO autorise une relaxation de population via l'anharmonicité des phonons [44]. Par ailleurs, dans la partie suivante, nous étudierons comment l'effet Auger ou l'absorption/émission de phonons acoustiques peuvent conduire à des temps de l'ordre de la picoseconde pour la relaxation intra-boîte des électrons ou

des trous vers les états liés de plus basse énergie.

Néanmoins, nous pouvons d'ores et déjà conclure que la prédiction d'un ralentissement de la relaxation de population dans les boîtes quantiques à partir de considération de phonon bottleneck est infirmée en ce qui concerne l'étape de capture à cause de l'existence des états croisés électron-trou. L'étude de la décohérence des états excités dans la partie suivante nous permet d'aborder l'aspect complémentaire de la relaxation entre états liés.

I.3 Décohérence des états excités

Si les restrictions au modèle de l'atome artificiel exposées dans la partie (I.2) ont des conséquences importantes sur la relaxation de population, quels en sont les effets sur la relaxation de cohérence dans une boîte quantique, en particulier pour les états excités qui sont des états intermédiaires dans les processus de relaxation de population ? Dans quelle mesure la dynamique de décohérence des états excités s'écarte-t-elle d'un régime déterminé par le temps de vie radiatif, et quelles informations sur les mécanismes de relaxation intra-boîte peut-on en tirer ?

La décohérence des états excités est un aspect essentiel de la physique de l'atome artificiel et son étude peut être menée de manière équivalente dans le domaine temporel ou dans le domaine spectral. Dans la limite d'un système à deux niveaux, la correspondance entre le temps de décohérence T_2 et la largeur homogène de la transition Γ est donnée par :

$$\Gamma = \frac{2\hbar}{T_2} \quad (\text{I.3.1})$$

avec $2\hbar=1.316 \mu\text{eV}\cdot\text{ns}$. Pour les expériences dans le domaine temporel, la dynamique de décohérence peut par exemple être sondée par une technique interférométrique basée sur l'excitation de l'état excité $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$ par une paire d'impulsions femtosecondes, cohérentes, décalées temporellement, et sur la détection de la photoluminescence de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ en fonction du retard entre les impulsions [45]. Dans le domaine spectral, une mesure de la largeur homogène des états excités dans une expérience d'excitation de la photoluminescence détectée sur l'état fondamental conduit à un résultat similaire, et c'est cette technique que nous avons employée [46]. Il est important de noter que, dans la Ref. [45], dans la mesure où il n'y a pas saturation de l'état $|S_e, S_h\rangle$ et où le système est en régime linéaire, les impulsions femtosecondes peuvent être remplacées par une source incohérente pourvu que sa largeur spectrale soit supérieure à celle de la transition excitée. L'expérience décrite dans la Ref. [45] est en fait une expérience de spectroscopie par transformée de Fourier sur la raie d'absorption de l'état excité. Dans la partie (I.4), nous présenterons un exemple de spectroscopie par transformée de Fourier pour l'étude de la transition fondamentale qui nécessite une très grande résolution spectrale. Dans le cas des états excités $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$, la résolution spectrale obtenue en spectroscopie d'excitation s'avère suffisante pour l'étude de leur largeur homogène.

I.3.1 Mesure de la largeur homogène des états excités

La présence de nombreuses raies fines dans le spectre d'excitation de la photoluminescence présenté sur la figure I.2.1 page 27 révèle la complexité du

spectre au voisinage de l'énergie des états excités; des mécanismes de type Raman résonant impliquant des modes de phonons localisés ont été proposés pour expliquer le nombre important de raies dans le spectre d'excitation [37]. Aussi une étude de la largeur homogène des états excités requiert-elle au préalable leur identification claire. A cet effet, nous avons recoupé les informations obtenues en spectroscopie d'excitation et en spectroscopie de photoluminescence en régime de saturation, comme indiqué sur la figure I.3.1. A basse puissance d'excitation, seul le signal de photoluminescence associé à la recombinaison radiative de l'état $|S_e, S_h\rangle$ est détecté (Fig. I.3.1(b), courbe du bas) alors que sous forte excitation, l'émission du fondamental sature et le signal de photoluminescence de l'état excité est observé. Le décalage en énergie de 5 meV de la raie vers 1.355 eV entre les spectres de photoluminescence et d'excitation de la photoluminescence provient des effets coulombiens en régime de saturation où plusieurs paires électron-trou peuplent la boîte quantique [47].

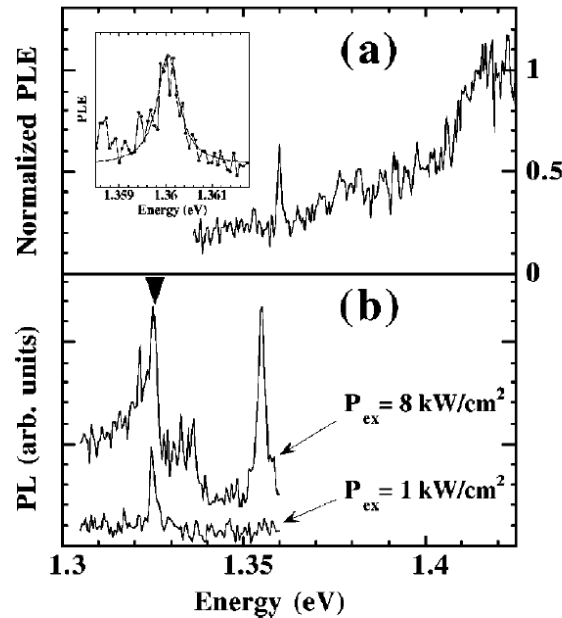


FIG. I.3.1 – Etat excité d'une boîte quantique unique InAs/GaAs observé simultanément sur les spectres d'excitation de la photoluminescence (a) et de photoluminescence en régime de saturation (b), à 10K. L'encart montre un agrandissement du spectre au niveau de la raie de l'état excité, qui est correctement reproduite par une lorentzienne (trait plein) de largeur $\Gamma=0.6$ meV, d'après [47].

L'encart de la figure I.3.1(a) montre un agrandissement du spectre au niveau de l'énergie de l'état excité. La raie est correctement reproduite par une lorentzienne (trait plein) de largeur $\Gamma=0.6$ meV, bien supérieure à la résolution

spectrale de $30 \mu\text{eV}$, qui est déterminée, en spectroscopie d'excitation, par la largeur spectrale du laser. Cette mesure donne une première indication de la largeur homogène des états excités. Nous constatons tout d'abord un écart de plus de deux ordres de grandeur avec la largeur naturelle des états de paire électron-trou dans une boîte quantique InAs/GaAs, de l'ordre du μeV . Cet effet ne trouve aucune explication dans le modèle artificiel présenté dans la partie (I.1.3.3). A la lumière des résultats présentés dans la partie (I.2) mettant à jour l'existence d'états croisés 2D-0D, l'observation d'une décohérence rapide des états excités suggère une interaction importante avec ces états qui sont en résonance avec les états $|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle$.

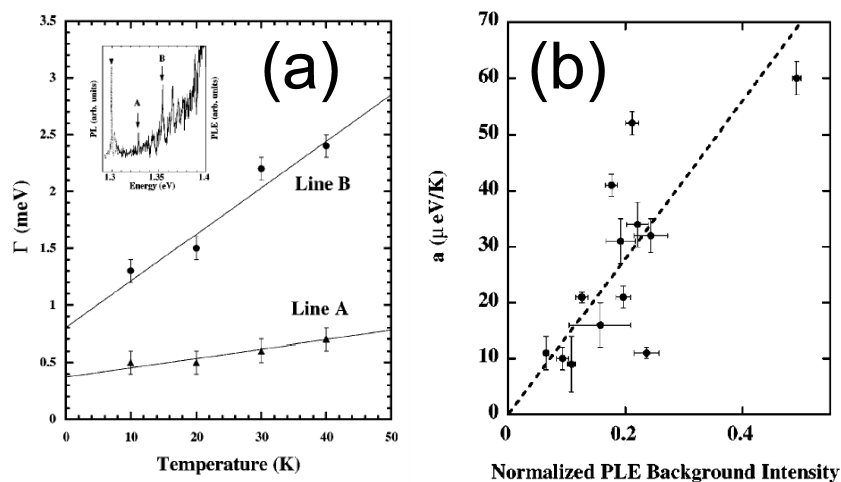


FIG. I.3.2 – (a) Largeur homogène de deux états excités de boîtes quantiques InAs/GaAs en fonction de la température (l'encart montre la position des deux raies dans le spectre d'excitation). (b) Corrélation entre l'efficacité du couplage aux phonons acoustiques et l'intensité normalisée du fond, à l'énergie de l'état excité correspondant, dans le spectre d'excitation de la photoluminescence, et ce pour 13 états excités de boîtes quantiques différentes, d'après [47].

Nous avons mené une étude systématique de l'élargissement des états excités avec la température et nous avons mis en évidence que les mécanismes d'élargissement des états excités sont thermo-activés avec une efficacité comparable voire supérieure à celle observée dans les puits quantiques. Sur la figure I.3.2(a) sont reportées les largeurs homogènes de deux états excités d'une même boîte quantique, dont le spectre d'excitation de l'état fondamental est donné dans l'encart. La largeur homogène des transitions A et B est mesurée dans l'intervalle [10K-40K] et nous observons un élargissement en fonction de la température qui est plus marqué pour la raie B, alors que celle-ci est précisément à plus haute énergie que la raie A. Une analyse quantitative de l'élargissement des états excités est

menée à partir de l'expression :

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + aT \quad (\text{I.3.2})$$

et nous obtenons $\Gamma_0 \sim 0.8$ meV et $a \sim 10 \pm 2$ $\mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ pour la raie A et $\Gamma_0 \sim 0.38$ meV et $a \sim 41 \pm 2$ $\mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ pour la raie B. Les valeurs de la largeur à température nulle et de l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement sont plus importantes pour l'état excité qui se trouve à plus haute énergie. D'autre part, la densité d'états du quasi-continuum des états croisés 2D-0D présente un comportement monotone avec l'énergie. Les résultats obtenus sur cette boîte quantique suggère un lien fort entre élargissement d'un état excité et résonance de ce dernier avec les états croisés.

Sur la figure I.3.2(b) nous confrontons, pour treize états excités de boîtes quantiques différentes, l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement, quantifiée par le facteur a de l'Eq.(I.3.2), avec l'intensité du fond dans le spectre d'excitation de la photoluminescence, évalué à l'énergie de l'état excité correspondant. Afin d'effectuer la comparaison entre plusieurs boîtes quantiques, nous avons normalisé chaque spectre d'excitation par l'intensité du signal lorsque le laser est résonant avec les états quasi-2D de la couche de mouillage, ce qui signifie que le signal dans le spectre d'excitation normalisé est égal à 1 pour des énergies du laser supérieures à 1.42 eV (Fig. I.3.1(a)). La forte corrélation observée sur la figure I.3.2(b) renforce l'hypothèse d'une interaction entre état excité et quasi-continuum des états croisés. Nous verrons dans la partie suivante qu'un couplage par absorption et émission de phonons acoustiques rend quantitativement compte de nos résultats.

En revanche, les valeurs de la largeur homogène à température nulle ne montrent pas de corrélation avec l'intensité du fond dans le spectre d'excitation. Elles varient entre 0.2 et 0.95 meV, soit des temps de décohérence T_2 compris entre 1.5 et 6.5 ps. L'absence de corrélation avec la densité des états croisés suggère une origine différente des mécanismes responsables de l'élargissement à température nulle, et nous discuterons le rôle joué par les effets Auger dans la partie (I.3.3).

I.3.2 Elargissement assisté par phonons acoustiques

L'existence d'un quasi-continuum d'états croisés en résonance avec les états excités d'une boîte quantique rend a priori possible la présence d'un élargissement assisté par phonons acoustiques. L'évaluation de l'importance de cet effet est effectuée dans le cadre de la règle d'or de Fermi en calculant la probabilité de diffusion d'un état excité vers les états croisés par absorption/émission de phonons acoustiques :

$$\Gamma_{LA} = 2\pi \sum_{f, \vec{q}} |\langle \psi_f | V_e + V_h | \psi_i \rangle|^2 \delta(\epsilon_f - \epsilon_i \pm \hbar\omega_{\vec{q}}) \quad (\text{I.3.3})$$

où V_e est le potentiel de couplage entre un électron et un phonon acoustique, V_h celui concernant le trou et $\hbar\omega_{\vec{q}}$ l'énergie du phonon de vecteur d'onde \vec{q} . Les signes + et - rendent compte des deux processus d'émission et d'absorption d'un phonon. L'état $|\psi_f\rangle$ est un état du continuum des états croisés avec lequel l'état excité $|\psi_i\rangle$ interagit.

L'interaction des électrons avec les phonons acoustiques se fait soit par couplage piézoélectrique soit par le potentiel de déformation. Dans le premier cas, les contraintes induites par le phonon crée, à une échelle macroscopique, un champ électrique qui interagit avec les électrons et les trous alors que dans le second, les déformations du cristal perturbent le potentiel coulombien vu par les porteurs. Dans les nanostructures de semiconducteurs III-V, la levée de dégénérescence entre trous lourds et légers due au confinement rend la contribution du potentiel de déformation dominante dans les processus d'élargissement, contrairement au semiconducteur massif [48]. Si le potentiel piézoélectrique varie en $1/\sqrt{q}$ et correspond à un couplage à longue portée [49], le potentiel de déformation agit à plus courte portée puisqu'il varie en \sqrt{q} :

$$V_\alpha^d = D_\alpha \sqrt{\frac{\hbar q}{2c_s \rho V}} (e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_\alpha} c_{\vec{q}} + e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_\alpha} c_{\vec{q}}^\dagger) \quad (\text{I.3.4})$$

où $\alpha=e$ ou h , D_α est la valeur du potentiel de déformation, c_s la vitesse du son dans le cristal, ρ la masse volumique, V le volume du cristal, et $c_{\vec{q}}^\dagger$ et $c_{\vec{q}}$ les opérateurs de création et d'annihilation d'un phonon dans le mode de vecteur d'onde \vec{q} tels que $[c_{\vec{q}}, c_{\vec{l}}^\dagger] = \delta_{\vec{q}, \vec{l}}$. La dépendance en \sqrt{q} du potentiel de déformation conduit à un couplage à plus ou moins courte portée. Dans la limite des grands vecteurs d'onde ($q \gg 2\pi/L$ où L est la taille caractéristique de la boîte quantique), le potentiel de déformation varie rapidement, et dans l'approximation de la fonction "enveloppe", l'élément de matrice $\langle \psi_f | V^d | \psi_i \rangle$ se factorise suivant le produit scalaire des états "enveloppes" initial et final que multiplie l'élément de matrice du potentiel de déformation entre les parties atomiques initiale et finale : dans la limite courte portée, le potentiel de déformation couple des états de parties atomiques différentes et de même état "enveloppe". En revanche, dans la limite des petits vecteurs d'onde ($q \ll 2\pi/a$ où a est la taille de la cellule élémentaire), le potentiel de déformation couple des états de même partie atomique et d'états "enveloppes" différents. C'est cette limite qui nous intéresse pour la suite où nous considérons des transitions entre états liés de la boîte quantique. Les vecteurs d'onde des phonons acoustiques impliqués dans les processus d'interaction électron-phonon ont des longueurs d'onde voisines de la taille de la boîte quantique, i.e. des énergies caractéristiques de l'ordre du meV [20], et les éléments de matrice sont calculés entre les états "enveloppes" initial et final.

Dans le processus de diffusion d'un état excité vers les états croisés par absorption/émission de phonons acoustiques, l'état final a une partie "enveloppe"

donnée par un état croisé et comme le premier quasi-continuum qui apparaît correspond aux états où le trou est délocalisé et l'électron sur un état "enveloppe" de type S , nous considérons pour les états finaux :

$$|\chi_f\rangle = |S_e, CM_h\rangle \quad (\text{I.3.5})$$

et pour l'état initial, l'un des états P :

$$|\chi_i\rangle = |P_e^\pm, P_h^\mp\rangle \quad (\text{I.3.6})$$

Dans ce cas, l'élément de matrice $\langle\chi_f|V_e+V_h|\chi_i\rangle$ est nul, car la partie électron est proportionnelle au produit scalaire $\langle P_h|CM_h\rangle$ (nul par orthogonalité), et la partie trou au produit scalaire $\langle S_e|P_e\rangle$ également nul. En revanche, en tenant compte de l'interaction coulombienne, les états S et P sont mélangés de sorte que l'état excité prend la forme :

$$|\chi_i\rangle = |\widetilde{P_e^\pm, P_h^\mp}\rangle = \beta_p|P_e^\pm, P_h^\mp\rangle + \beta_s|S_e, S_h\rangle \quad (\text{I.3.7})$$

où la notation tilde rend compte du faible poids de l'état S ($\beta_s < \beta_p$) dans le nouvel état propre du système avec interaction coulombienne. Bien que faible, cette composante S dans l'état excité est essentielle puisqu'elle rend l'élément de matrice du hamiltonien de déformation non nul. Son expression est donnée par :

$$\beta_s D_h \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\vec{q}}}{2\rho c_s^2 V}} \sqrt{n_{\vec{q}} + \frac{1 \pm 1}{2}} \langle CM_h | e^{\mp i\vec{q}\cdot\vec{r}_h} | S_h \rangle \quad (\text{I.3.8})$$

où $n_{\vec{q}}$ est le facteur de Bose d'occupation des phonons de vecteur d'onde \vec{q} à la température T . L'énergie moyenne des phonons acoustiques en jeu étant de l'ordre du meV, $n_{\vec{q}}$ se linéarise pour des températures supérieures à 10K, ce qui conduit à une dépendance en \sqrt{T} de l'élément de matrice. Finalement, l'élargissement assisté par phonons acoustiques prend la forme [38] :

$$\Gamma_{LA} = \left(2\pi \frac{|\beta_s|^2 D_h^2 k_B}{\rho c_s^2} \sum_f \delta(\epsilon_f - \epsilon_i) \right) T \quad (\text{I.3.9})$$

soit une variation linéaire en température où l'expression entre parenthèses correspond au coefficient a introduit pour quantifier l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement avec la température. En prenant $D_h \sim 6.7$ eV, $\rho \sim 5.3$ g.cm⁻³, $c_s \sim 5000$ m.s⁻¹ et $|\beta_s|^2 \sim 0.04$ [41], nous obtenons une valeur de a de 20 $\mu\text{eV/K}$, en très bon accord avec les valeurs expérimentales qui se situent entre 10 et 60 $\mu\text{eV.K}^{-1}$ (Fig. I.3.2(b)). Par ailleurs, le coefficient a est proportionnel à la densité des états croisés ($\sum_f \delta(\epsilon_f - \epsilon_i)$) à l'énergie de l'état excité, puisque les processus assistés par phonons acoustiques sont quasi-élastiques. Cet élément explique la corrélation mesurée entre l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement et l'intensité du fond dans le spectre d'excitation (Fig. I.3.2(b)).

Finalement, les mesures de largeur homogène des états excités en fonction de la température sont quantitativement expliquées par des mécanismes quasi-élastiques de diffusion vers les états croisés par absorption/émission de phonons acoustiques. Sans le quasi-continuum d'états 2D-0D, ces processus seraient absents ainsi que le prévoit le modèle de l'atome artificiel. Dans les puits quantiques, l'élargissement en température des excitons de plus basse énergie s'écrit de même $\Gamma_0 + aT$ où a correspond à l'efficacité du couplage aux phonons acoustiques qui diffusent l'exciton fondamental vers des états finaux de vecteurs d'onde non nuls. Dans les puits quantiques $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, ce coefficient varie entre 1.5 et 11 $\mu\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$ [50, 51, 52]. Les valeurs présentées sur la figure I.3.2(b) sont un ordre de grandeur plus élevées que pour les puits quantiques. Nous en concluons que le quasi-continuum des états croisés, non seulement met en défaut le modèle de l'atome artificiel en autorisant un élargissement assisté par phonons acoustiques pour les états excités de boîtes quantiques, mais qu'en plus il conduit à une efficacité de ces processus qui est plus grande que dans le système quasi-2D d'hétérostructures à puits quantiques.

En résumé, nous constatons que la présence du quasi-continuum des états croisés -propriété intrinsèque d'une boîte quantique- influence non seulement la capture des porteurs mais aussi la relaxation intra-boîte. Notre étude infirme en particulier un des corollaires de l'effet de phonon bottleneck concernant la décohérence limitée par la recombinaison radiative.

I.3.3 Elargissement à température nulle

Dans nos expériences, la largeur homogène à température nulle ne présente pas de corrélation avec la densité d'états du quasi-continuum 2D-0D. Cette observation suggère l'existence d'un autre mécanisme d'élargissement important puisque les temps de décohérence mesurés sont compris entre 1.5 et 6.5 ps. Comme nous l'avons mentionné à la fin de la partie (I.2), la relaxation intra-boîte par effet Auger est susceptible d'être très efficace. Dans l'article [53], des temps caractéristiques de l'ordre de la ps sont calculés pour la relaxation de l'électron et du trou entre états liés d'une boîte quantique par corrélation coulombienne entre deux électrons, deux trous, et enfin entre un électron et un trou. Les processus impliquant exclusivement des états liés de la boîte quantique pour les états initiaux et finaux ont en général une efficacité très faible à cause de la condition de conservation de l'énergie, qui est assurée seulement dans des cas particuliers où la géométrie de la boîte quantique donne les énergies de confinement adéquates. C'est la raison pour laquelle sont considérés dans la Ref. [53] des processus Auger où l'un des porteurs est éjecté de la boîte quantique dans un état quasi-2D de la couche de mouillage. Pour les corrélations à deux électrons (trous), cette hypothèse impose que la distance en énergie S_e-P_e (S_h-P_h) soit plus grande que

la distance P_e-CM_e (respectivement, P_h-CM_h) et pour les corrélations électron-trou, que la distance en énergie S_e-P_e (S_h-P_h) soit plus grande que la distance P_h-CM_h (respectivement, P_e-CM_e). Dans le cadre du problème de l'élargissement de l'état excité $|\widetilde{P_e, P_h}\rangle$, un effet Auger qui fait relaxer l'électron vers l'état S_e et promeut le trou vers un état CM_h est équivalent à une diffusion de l'état excité vers un état croisé $|S_e, CM_h\rangle$, de sorte que la signature spectroscopique garantissant l'existence d'un effet Auger important entre électron et trou est à nouveau la présence d'un quasi-continuum d'états croisés en résonance avec l'état excité $|\widetilde{P_e, P_h}\rangle$. Bien que nous n'observions pas de corrélation entre la largeur homogène à température nulle et la densité d'états du quasi-continuum dans nos expériences, l'ordre de grandeur des temps de cohérence mesurés est compatible avec des effets coulombiens qui couplent les états excités et les états croisés 2D-0D.

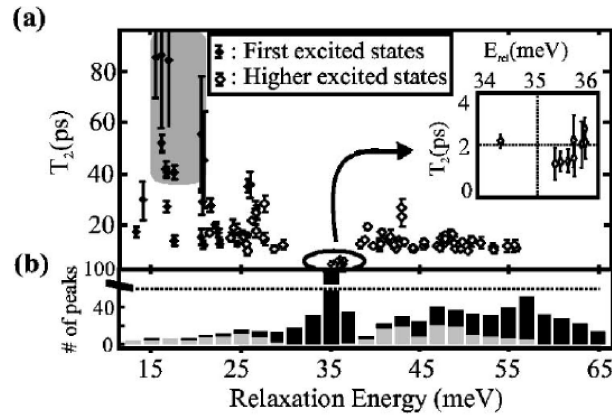


FIG. I.3.3 – (a) Temps de décohérence à 10K des états excités de boîtes quantiques InGaAs en fonction de l'écart en énergie au fondamental. (b) Histogramme du nombre des états excités étudiés en fonction de l'écart en énergie au fondamental, avec en gris le nombre d'états dont le T_2 est supérieur à 7 ps, d'après [55].

Des éléments de réponse supplémentaires sont apportés par les résultats publiés dans la Ref. [54]. Dans cet article, les auteurs présentent une étude systématique sur une centaine de boîtes quantiques InGaAs du temps de décohérence des états excités à basse température. Les données sont analysées en fonction de l'écart en énergie entre l'état fondamental et l'état excité (Fig. I.3.3). Sur l'histogramme du nombre des états excités étudiés en fonction de l'écart en énergie au fondamental, est indiqué en gris le nombre d'états dont le T_2 est supérieur à 7 ps (Fig. I.3.3(b)). Nous constatons qu'au-dessus de 37 meV, la probabilité d'avoir des T_2 supérieurs à 7 ps diminue lorsque le désaccord avec le fondamental augmente ; dans la fenêtre spectrale [29 meV-37 meV] une importante diminution du temps de décohérence est observée avec des valeurs de l'ordre de quelques ps seulement

(une interprétation de cette résonance très marquée au voisinage de l'énergie d'un phonon optique sera discutée dans la discussion des effets polaroniques dans la partie (I.4.2.1)); enfin, en dessous de 30 meV, le temps de décohérence est quasiment systématiquement supérieur à une dizaine de ps. A titre de comparaison, dans notre étude où les temps de décohérence sont tous inférieurs à 7 ps, l'écart en énergie entre les états excités et fondamentaux varie entre 17 et 40 meV, ce qui signifie que nous avons également étudié des états excités à plus basse énergie que 30 meV, mais que dans notre cas les T_2 sont faibles contrairement aux résultats de la Ref. [54].

La comparaison des spectres d'excitation révèle des situations très distinctes puisque, dans notre cas nous observons systématiquement un quasi-continuum d'états croisés en résonance avec les états excités, alors que dans la Ref. [54], l'intensité du fond dans les spectres d'excitation de la photoluminescence est systématiquement très faible pour les états excités de plus faible largeur spectrale. En fait, le paramètre pertinent du problème n'est pas seulement la distance en énergie entre les états excités et fondamentaux, mais plus généralement la morphologie de la boîte quantique. La présence d'un quasi-continuum d'états croisés en résonance avec les états excités garantit une géométrie de la boîte quantique adaptée à l'existence de processus de relaxation Auger efficaces où l'un des porteurs est éjecté de la boîte quantique, ainsi que calculé dans la Ref. [53]. Aussi les temps de décohérence de plusieurs dizaines de ps dans la Ref. [54] sont-ils compatibles avec une inhibition des effets Auger dans des boîtes quantiques telles que les états 2D-0D sont à plus haute énergie que les états excités [43].

Une identification définitive des effets coulombiens comme responsables des mécanismes d'élargissement à température nulle nécessite cependant des études complémentaires en fonction de la puissance d'excitation. Sur la figure I.3.1, nous constatons que la largeur de l'état excité est plus grande dans le spectre de photoluminescence à haute puissance que dans le spectre d'excitation, avec une augmentation de la largeur homogène d'un facteur 2 lorsque la densité d'excitation est multipliée par huit. Cet élément constitue une nouvelle preuve de l'implication des effets Auger dans les processus de décohérence à température nulle, cependant, nous ne disposons pas d'étude systématique nous permettant de conclure définitivement sur ce point.

I.3.4 Conclusion

La décohérence des états excités dans une boîte quantique est déterminée par la présence d'un quasi-continuum d'états croisés en résonance avec les états excités, qu'il s'agisse des processus d'élargissement assistés par phonons acoustiques lorsque la température augmente, ou des effets Auger à température nulle. La mise en évidence de ces effets réduit les limites de validité du modèle de l'atome artificiel, et pour la décohérence des états excités, l'obtention de T_2

supérieurs à une dizaine de ps fait figure d'exception, même à basse température. Cependant, force est de constater qu'un ralentissement de la décohérence des états excités et plus généralement de la relaxation intra-boîte est possible sur des échelles de temps de quelques dizaines de ps ; il faut alors noter que c'est la géométrie de la boîte quantique qui est en jeu et pas seulement la distance en énergie entre les états excité et fondamental ainsi qu'en attestent les mesures de temps de décohérence d'états excités dans les Ref. [46, 54] qui présentent des T_2 très différents et qui sont pourtant à la même distance en énergie du fondamental. Il n'est donc pas possible d'exclure de manière absolue un effet de "bottleneck" pour la relaxation de population entre états excités et état fondamental. Cependant, à l'échelle du temps de vie radiatif de l'état fondamental de l'ordre de la nanoseconde, les temps de décohérence des états excités restent courts même dans les cas exceptionnels où le T_2 atteint des valeurs proches d'une centaine de ps.

En définitive, l'existence du quasi-continuum des états croisés au voisinage de l'énergie des états excités permet, de manière plus ou moins efficace, une relaxation séparée des *électrons* ou des *trous* par absorption/émission de phonons acoustiques ou par effet Auger. Dans le cas spécifique de la relaxation de population, ces mécanismes offrent une possibilité de contourner le problème de l'annulation de la densité des états croisés à l'énergie des états $|S_e, S_h\rangle$, qui limite la relaxation de *paires électron-trou* par une cascade d'émission de phonons.

I.4 Décohérence de l'état fondamental

L'existence d'un régime de confinement, pour lequel les états excités ont des temps de décohérence longs à cause d'un désaccord avec les états 2D-0D, fournit un premier élément de réflexion pour la discussion de la décohérence de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ qui est intrinsèquement protégé du quasi-continuum des états croisés, distants au minimum de l'écart en énergie $S_h - CM_h$. Par ailleurs, il est important de noter que l'hybridation entre les états "enveloppes" de type S et P à cause de l'interaction coulombienne ne conduit pas à un élargissement de l'état fondamental proportionnel à la largeur de l'état excité car c'est la densité d'états finals à l'énergie de l'état fondamental hybridé qui donne l'efficacité des processus (cf. le cas réciproque de l'élargissement de l'état excité hybridé dans la partie (I.3.2)). Aussi omettrons-nous de mentionner l'hybridation $S-P$ dans l'écriture de l'état fondamental.

Nous allons voir dans cette partie que l'état fondamental a certes une dynamique de décohérence plus lente que l'état excité, mais que la physique des processus d'élargissement présente -malheureusement pour le modèle de l'atome artificiel- une très grande richesse.

I.4.1 Limites du système à deux niveaux

Un premier exemple de la variété des mécanismes de déphasage de l'état fondamental est révélé par une étude fine du profil spectral de la transition fondamentale. Nous travaillons toujours sur une boîte quantique unique, éliminant ainsi tout élargissement inhomogène lié aux variations de taille des boîtes quantiques.

I.4.1.1 Profil de raie non-lorentzien

Nous avons étudié le caractère lorentzien de la raie de photoluminescence de l'état fondamental par des expériences de spectroscopie de photoluminescence en fonction de la température, à l'aide d'une détection multi-canal à très bas-bruit basée sur un composant CCD mis en place par les services techniques du laboratoire [55]. Sur la figure I.4.1(a), les symboles montrent les résultats obtenus pour une boîte quantique émettant à 1.39 eV à 10K, isolée dans un ensemble dilué de boîtes quantiques provenant de la zone frontière d'un échantillon.

Lorsque la température augmente, la raie s'élargit et se décale vers le rouge avec une diminution de l'énergie centrale donnée par la variation du gap d'InAs avec la température. Pour caractériser le profil spectral en fonction de la température, nous avons comparé les données expérimentales à des fits lorentziens ajustés sur la partie centrale de la raie (traits pleins, fig. I.4.1(a)). Nous constatons un excellent accord à basse température ($T \leq 10K$) puis une déviation de plus en plus prononcée qui se traduit par l'apparition d'ailes dans une fenêtre spectrale de

5 meV. Ces ailes sont asymétriques jusqu'à 50K, symétriques au delà, et elles tendent à dominer tout le spectre, ainsi que nous le constatons à partir de 80K où celui-ci redevient quasi-lorentzien.

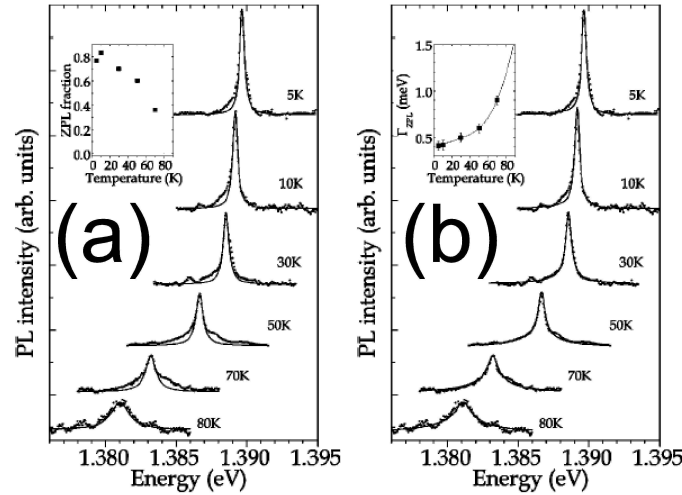


FIG. I.4.1 – Spectres de photoluminescence d'une boîte quantique unique InAs/GaAs, normalisés pour chaque température à l'intensité intégrée, dans la gamme (5K-80K). (a) Comparaison à des fits lorentziens ajustés sur la partie centrale de la raie. Encart : poids de la raie à zéro-phonon en fonction de la température. (b) Comparaison aux calculs effectués dans le cadre du modèle de Huang-Rhys. Encart : largeur de la raie à zéro-phonon utilisée pour les calculs, d'après [57].

Dans la limite d'un système à deux niveaux et quel que soit le régime de décohérence ($T_2 \ll 2T_1$ ou $T_2 \sim 2T_1$), la transition optique associée à un état électronique a un profil spectral lorentzien dont la largeur est inversement proportionnelle au temps de décohérence ($\Gamma = 2\hbar/T_2$). Le caractère non-lorentzien de la raie de photoluminescence sur la figure I.4.1(a) révèle une limite supplémentaire du modèle de l'atome artificiel à décrire les propriétés électroniques et optiques d'une boîte quantique, quand bien même il s'agit de l'état fondamental sensé être protégé d'un certain nombre d'effets mis en évidence dans les parties précédentes, pour les états de paire électron-trou à plus haute énergie.

La déviation à un profil de raie lorentzien pour une boîte quantique unique InAs/GaAs a été observée pour la première fois en 2003 par notre équipe [56]. Cet effet avait précédemment été observé, en 2000, sur une boîte quantique unique CdTe de semiconducteurs II-VI [57]. Alors que depuis le milieu des 1990, le système InAs/GaAs est l'un des plus étudiés dans le domaine de la spectroscopie sur boîtes quantiques uniques, aucun article n'avait mentionné jusqu'à notre travail l'existence d'un profil de raie non-lorentzien pour des boîtes quantiques

uniques InAs/GaAs. Une indication de son existence a par contre été apportée indirectement par des expériences de mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes quantiques InGaAs [58]. Dans cet article, les auteurs observent un déclin bi-exponentiel du signal d'écho de photons lorsque la température augmente, avec en particulier une composante courte pendant les premières ps. Dans l'hypothèse -stricte- où toutes les boîtes quantiques ont la même dynamique de décohérence, la transformée de Fourier du signal résolu dans le temps correspond au profil de raie, de sorte que la composante rapide du signal de mélange à quatre ondes donne des ailes symétriques de part et d'autre d'une raie centrale lorentzienne [58].

La compréhension de l'origine de ce profil de raie non-lorentzien et de ses conditions d'observation nous permet de répondre aux interrogations soulevées par cette discussion sur l'universalité de ce phénomène et sur son éventuelle dépendance avec les matériaux, types de boîtes quantiques utilisés.

I.4.1.2 Bandes latérales de phonons acoustiques

Les bandes latérales autour d'une raie centrale lorentzienne observées sur la figure I.4.1(a) sont dues à la recombinaison radiative assistée par phonons acoustiques de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$. L'analyse théorique de cet effet est une extension, pour des états de paire électron-trou, de la théorie de Huang-Rhys développée pour l'interaction électron-phonon dans le cadre d'électrons localisés [59]. Cette analyse repose sur la diagonalisation du système constitué par un état discret couplé à un continuum d'états de phonons acoustiques, qui conduit à un hamiltonien de bosons indépendants.

Le hamiltonien de notre système est donné par :

$$H = E_0 + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^{\dagger} c_{\vec{q}} + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} (f_{\vec{q}}^* c_{\vec{q}}^{\dagger} + f_{\vec{q}} c_{\vec{q}}) \quad (\text{I.4.1})$$

où E_0 est l'énergie de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$, $\hbar\omega_{\vec{q}}$ l'énergie d'un phonon acoustique de vecteur d'onde \vec{q} , $f_{\vec{q}} = \langle S_e, S_h, 0 | V^d | S_e, S_h, 1_{\vec{q}} \rangle / \hbar\omega_{\vec{q}}$ est l'élément de matrice caractérisant l'intensité du couplage aux phonons acoustiques, où, comme dans la partie (I.3.2), nous ne considérons que le potentiel de déformation donné par l'équation (I.3.4). En posant $a_{\vec{q}} = c_{\vec{q}} + f_{\vec{q}}^*$, cet hamiltonien prend la forme :

$$H = E_0 - \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} a_{\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{q}} \quad (\text{I.4.2})$$

où le nouvel opérateur de destruction $a_{\vec{q}}$ décrit une quasi-particule bosonique puisque $[a_{\vec{q}}, a_{\vec{l}}^{\dagger}] = \delta_{\vec{q}, \vec{l}}$. Le hamiltonien du système formé par l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ couplé aux phonons acoustiques est transformé en un hamiltonien de bosons indépendants, qui montre la nécessité de traiter les degrés de liberté du réservoir de phonons en même temps que les degrés de liberté électroniques

dans la boîte quantique. Cet effet résulte du confinement quantique dans la boîte quantique où déformation locale du cristal dans la nanostructure et présence de porteurs fortement localisés sont liés. Le nouvel état fondamental du système incluant le réservoir de phonons acoustiques est donné par [20] :

$$|\widehat{S_e, S_h}\rangle = \exp\left(-\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^*/2\right) \exp\left(\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* c_{\vec{q}}^+\right) |S_e, S_h, 0\rangle \quad (\text{I.4.3})$$

$$= |S_e, S_h\rangle \otimes \exp\left(-\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^*/2\right) \exp\left(\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* c_{\vec{q}}^+\right) |0\rangle \quad (\text{I.4.4})$$

où nous constatons que l'état fondamental $|\widehat{S_e, S_h}\rangle$ se factorise suivant $|S_e, S_h\rangle \otimes |\Psi_{ph}\rangle$ avec $|\Psi_{ph}\rangle$ l'état décrivant le réservoir de phonons acoustiques. Cette situation ne correspond pas à un régime de couplage fort dans la mesure où il n'y a pas intrication des états d'électron et de phonon. Néanmoins, la prise en considération de cet effet est essentielle pour rendre compte de la présence de bandes latérales de phonons acoustiques.

Le profil spectral de la transition fondamentale est obtenu en incluant l'interaction dipolaire électrique et en calculant d'abord la probabilité $W_{\vec{q}_i}(p_i)$ d'avoir p_i phonons acoustiques de vecteur d'onde \vec{q}_i émis ($p_i < 0$) ou absorbés ($p_i > 0$) durant la recombinaison radiative de l'état $|S_e, S_h\rangle$ [59]. Ensuite, la statistique des photons émis est calculée en sommant sur toutes les configurations possibles :

$$I(E) \propto \sum_{\vec{p}} \prod_{i=1}^N W_{\vec{q}_i}(p_i) \delta(E - E_0 - \sum_{j=1}^N p_j \hbar c_s q_j) \quad (\text{I.4.5})$$

où le quasi-continuum des phonons acoustiques est discrétisé sur N modes ($N \gg 1$), $\vec{p} = \{p_1, p_2, \dots, p_N\}$ et chaque p_i varie entre $-\infty$ et $+\infty$.

Le profil spectral de la transition est constitué d'une raie centrale à zéro-phonon associée à la recombinaison radiative de $|S_e, S_h\rangle$ sans échange net d'énergie avec le réservoir de phonons, soit $\sum_{j=1}^N p_j \hbar c_s q_j = 0$ ($\vec{p} = \vec{0}$ correspond seulement au cas particulier où aucun phonon n'a été absorbé ou émis). Les bandes latérales autour de la raie à zéro-phonon proviennent des photons émis à plus basse ou plus haute énergie suivant que $\sum_{j=1}^N p_j \hbar c_s q_j$ est respectivement négatif ou positif. A ce stade, une comparaison avec nos données expérimentales est vouée à l'échec puisque ce modèle prédit une largeur de la raie à zéro-phonon nulle alors que la partie centrale lorentzienne de nos spectres a une largeur finie. En conséquence, il est indispensable d'introduire phénoménologiquement la largeur de la raie à zéro-phonon et de convoluer le profil de raie donné par l'équation (I.4.5) par une lorentzienne de largeur Γ_{ZPL} . Dans les profils calculés (traits pleins, Fig. I.4.1(b)), nous prenons comme valeurs de Γ_{ZPL} les largeurs des profils lorentziens utilisés pour ajuster la partie centrale des spectres expérimentaux (Fig. I.4.1(a)) ; tous les autres paramètres sont fixes sur la gamme de température

étudiée. Nous obtenons un excellent accord avec les données expérimentales qui montre que la déviation à un profil lorentzien provient de l'interaction avec les phonons acoustiques.

L'extension spectrale des ailes est déterminée par l'énergie moyenne des phonons acoustiques impliqués, dont la longueur d'onde caractéristique est de l'ordre de la taille de la boîte quantique, soit une énergie moyenne de l'ordre du meV. A basse température ($kT \ll \text{meV}$), la probabilité d'absorber des phonons est très faible et seuls les processus d'émission ont lieu : les bandes latérales de phonons acoustiques sont asymétriques avec seulement la composante à basse énergie. A haute température ($kT \gg \text{meV}$), absorption et émission de phonons sont équiprobables et les ailes deviennent symétriques. Enfin, la visibilité des bandes latérales dépend de la largeur de la raie à zéro-phonon. En effet, la convolution par une lorentzienne normalisée ne modifie pas l'intensité du quasi-continuum formé par les ailes alors que l'intensité maximale du pic central est inversement proportionnelle à la largeur de la raie à zéro-phonon. C'est la raison pour laquelle nous observons aisément les bandes latérales sur la figure I.4.1 car la largeur de la raie à zéro-phonon de cette boîte quantique est très élevée pour un état fondamental ($390 \mu\text{eV}$ à 10K, voir encart Fig. I.4.1). En revanche, plus la raie à zéro-phonon est fine, plus les ailes sont difficiles à observer [56]. Ceci explique pourquoi cet effet n'avait pas été observé précédemment sur boîte quantique unique InAs/GaAs dans un contexte scientifique centré sur la recherche de boîtes quantiques pour l'information quantique avec des raies très fines, i.e. des temps de décohérence très longs, proches de la limite radiative.

En résumé, alors que l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ est isolé spectralement de tout autre état de paire électron-trou, nous voyons que l'interaction avec les phonons acoustiques conduit à un élargissement de la transition fondamentale. A la différence de l'état excité où absorption et émission de phonons acoustiques sont des processus réels associés à la diffusion vers des états électroniques finaux, il s'agit, pour l'état fondamental, de processus virtuels car il n'y a pas d'états finaux dans la fenêtre spectrale de quelques meV autour de l'état $|S_e, S_h\rangle$. C'est la recombinaison radiative assistée par phonons acoustiques qui conduit à un profil spectral non-lorentzien de la transition fondamentale. Nous identifions donc une limitation au modèle de l'atome artificiel qui ne repose plus sur l'existence d'un quasi-continuum d'état croisés comme c'était le cas jusqu'à présent. Dans le cas de l'état fondamental, nous sommes confrontés à un effet intrinsèque à un état discret couplé au réservoir des modes de vibration de la matrice cristalline. Il s'agit d'une propriété générale aux boîtes quantiques où les effets liés à la composition des matériaux sont a priori faibles puisque l'intensité du couplage aux phonons acoustiques est beaucoup moins sensible à la polarité de la liaison entre atomes de la cellule élémentaire que dans le cas des phonons optiques. Les conséquences sur la largeur homogène de l'état $|S_e, S_h\rangle$ à température ambiante sont importantes puisque la transition fondamentale atteint des largeurs de l'ordre de 5 à 10

meV, avec des profils quasi-lorentziens [60, 61]. Ces valeurs définissent une limite inférieure à la largeur spectrale de la courbe de gain qu'il est possible d'atteindre dans des lasers à boîtes quantiques avec un faible élargissement inhomogène.

Dans le cadre de l'information quantique, les conséquences sont contrastées suivant le type d'applications. Pour la distribution de clef en cryptographie quantique, l'élargissement de la transition fondamentale ne pose pas de problème puisqu'il n'affecte pas la statistique d'émission sub-poissonienne, qui est la seule propriété requise pour la génération de photons uniques. C'est la raison pour laquelle l'effet d'antibunching a été observé par de nombreux groupes sans que les largeurs homogènes soient limitées par la largeur naturelle. Dans la perspective de la génération de photons uniques à température ambiante avec des boîtes quantiques, les bandes latérales de phonons acoustiques n'imposent pas de limitation. En revanche, pour la coalescence de photons indiscernables ou la manipulation cohérente de bits quantiques, tout écart à la situation où $T_2=2T_1$ réduit l'efficacité des processus escomptés (partie (I.1.3.3)). De fait, l'existence de bandes latérales de phonons acoustiques compromet a priori l'extension de ces expériences à température ambiante, à moins de relever le défi de pouvoir contrôler la densité de modes des phonons acoustiques dans des microstructures adéquates.

I.4.2 Origines de l'élargissement de la raie à zéro-phonon

Dans le modèle de Huang-Rhys pour une paire électron-trou localisée, la raie à zéro-phonon n'est pas élargie. Les résultats expérimentaux de la partie précédente sont correctement reproduits à partir de la convolution d'un profil lorentzien de largeur finie Γ_{ZPL} avec les spectres calculés dans le modèle de Huang-Rhys. Les valeurs utilisées pour Γ_{ZPL} dans les simulations sont indiquées dans l'encart de la figure I.4.1(b). Nous constatons que ce paramètre phénoménologique de notre modèle est d'une part bien supérieur à la largeur naturelle de la transition fondamentale de l'ordre du μeV alors que $\Gamma_{ZPL} \geq 400 \mu\text{eV}$, et que d'autre part, il n'est pas constant avec une variation avec la température que nous pouvons reproduire avec :

$$\Gamma_{ZPL}(T) = \Gamma_{ZPL}^0 + \alpha T + \gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{I.4.6})$$

où $\Gamma_{ZPL}^0 = 390 \pm 50 \mu\text{eV}$, $\alpha = 3.5 \pm 1.5 \mu\text{eV.K}^{-1}$, $\gamma = 50 \pm 30 \text{ meV}$ et $E_a = 30 \pm 5 \text{ meV}$ pour la boîte quantique étudiée sur la figure I.4.1.

Cette observation soulève plusieurs problèmes : pourquoi la largeur de la raie à zéro-phonon n'est-elle pas limitée par la largeur naturelle à température nulle puisque l'état fondamental n'est pas en résonance avec un quasi-continuum d'états croisés ? Pourquoi existe-t-il une thermo-activation de Γ_{ZPL} , avec un comportement linéaire comparable à celui observé pour l'état excité pour $T < 50\text{K}$, alors

que nous avons déjà tenu compte de l'interaction avec les phonons acoustiques dans la modélisation des bandes latérales et que, par ailleurs, il n'y a pas d'états 2D-0D en résonance avec l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$? Enfin, d'où vient le terme exponentiel avec la température qui donne la contribution dominante à Γ_{ZPL} pour $T > 50$ K?

I.4.2.1 Interaction avec les phonons optiques

La largeur de la raie à zéro-phonon présente une augmentation exponentielle avec la température au dessus de 50K, analogue à celle observée pour les excitons des puits quantiques, où le terme $\gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$ dans la variation de la largeur de raie provient de la diffusion de l'exciton fondamental vers des états du continuum par absorption d'un phonon optique. L'énergie d'activation E_a est donnée par l'énergie du phonon optique, de l'ordre de 36 meV dans GaAs. Cette similitude suggère l'implication des phonons optiques dans les mécanismes d'élargissement de la raie à zéro-phonon par le biais de l'interaction de Fröhlich.

Nous avons montré que l'énergie d'activation E_a est cependant plus faible que l'énergie d'un phonon optique d'InAs de l'ordre de 32 meV ou de GaAs de l'ordre de 36 meV et nous mesurons des valeurs comprises entre 21 et 30 ± 5 meV [62, 63, 56]. Quant à l'énergie caractéristique γ , elle est de l'ordre de quelques dizaines de meV. Des valeurs comparables ont été reportées dans la littérature [60, 61, 58, 64]. Ces processus jouent un rôle important dans l'élargissement de la raie à zéro-phonon et nous discutons à présent trois modèles mettant en jeu les phonons optiques et susceptibles d'expliquer l'augmentation exponentielle de Γ_{ZPL} pour $T > 50$ K.

- *Diffusion vers des états 2D-0D par absorption de phonons optiques*

Le premier mécanisme possible pour expliquer l'augmentation exponentielle de la largeur de la raie à zéro-phonon est la diffusion de l'état fondamental vers des états 2D-0D par absorption d'un phonon optique. Ce processus du premier ordre, analogue à celui rencontré dans les puits quantiques, conduit à un élargissement proportionnel au facteur d'occupation de Bose des phonons optiques. Il en résulte une augmentation exponentielle avec la température dans la gamme $T \leq 300$ K avec une énergie d'activation égale à l'énergie d'un phonon optique. L'observation d'énergies d'activation plus faibles nous indique que ce mécanisme n'est pas dominant.

- *Diffusion vers des états polaroniques : influence du couplage fort avec les phonons optiques*

La prédiction d'énergies d'activation différentes de l'énergie d'un phonon optique a été formulée dans la Ref. [44]. Dans cet article, les auteurs démontrent l'existence d'un régime de couplage fort pour les états de paire électron-trou en interaction avec les phonons optiques par le couplage de Fröhlich. Les nouveaux

états propres du système formé par la boîte quantique couplée aux modes de vibrations optiques de la matrice cristalline sont des états mixtes électron-phonon optique appelés polarons. Cette situation est radicalement différente de celle discutée dans la partie (I.4.1.2) pour le couplage de l'état fondamental aux phonons acoustiques, où l'état propre du système global reste factorisable en une partie électronique et une partie phononique. La notion d'émission ou d'absorption de phonons optiques entre états de paire électron-trou n'est plus pertinente dans la mesure où les états stationnaires du système électron-phonon optique sont des combinaisons linéaires d'états factorisés avec zéro, un ou deux phonons optiques. En conséquence, les mécanismes de décohérence activés avec la température doivent être analysés à partir des transitions possibles entre états polaroniques.

Le spectre des états polaroniques est obtenu, en première approximation, en diagonalisant le hamiltonien du système restreint aux états $\{|S_e, S_h\rangle \otimes |\Psi_{ph}\rangle, |S_e, P_h^\pm\rangle \otimes |\Psi_{ph}\rangle, |P_e^\pm, S_h\rangle \otimes |\Psi_{ph}\rangle, |P_e^\pm, P_h^\pm\rangle \otimes |\Psi_{ph}\rangle\}$ avec $|\Psi_{ph}\rangle = |0\rangle$ ou $|1_{\vec{q}}\rangle$ ou $|1_{\vec{q}}, 1_{\vec{q}}\rangle$ pour les états à zéro, un et deux phonons optiques, respectivement [44]. Les phonons optiques présentent une faible dispersion en énergie de l'ordre de quelques meV. Les effets du couplage fort pour l'état fondamental d'une boîte quantique sont faibles puisque l'état polaronique de plus basse énergie est décalé vers le rouge d'un peu moins d'un meV par rapport à l'état $|S_e, S_h\rangle \otimes |0\rangle$, qui constitue la composante majoritaire de l'état fondamental polaronique. En revanche, les états de paire électron-trou excités sont fortement perturbés par le couplage fort aux phonons optiques.

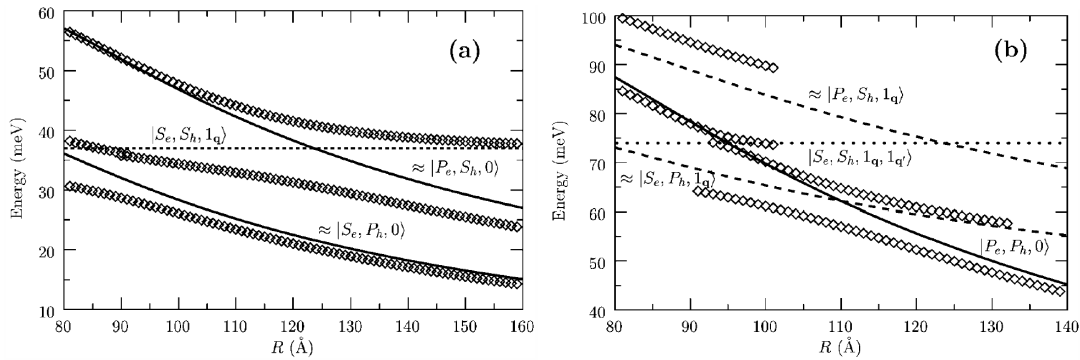


FIG. I.4.2 – Etats polaroniques excités distants d'environ un phonon optique (a), et deux phonons optiques (b) de l'état fondamental, en fonction du rayon de la boîte quantique, d'après [45].

Dans la fenêtre spectrale centrée à un phonon optique au-dessus de l'état fondamental, des anti-croisements se produisent entre l'état $|S_e, S_h\rangle \otimes |1_{\vec{q}}\rangle$ et les états $|S_e, P_h^\pm\rangle \otimes |0\rangle$, $|P_e^\pm, S_h\rangle \otimes |0\rangle$ lorsque les désaccords en énergie entre ces états deviennent nuls (Fig. I.4.2(a)). A deux phonons optiques du fondamental, l'état

$|P_e, P_h\rangle \otimes |0\rangle$ présente des anti-croisements successifs avec les états $|P_e, S_h\rangle \otimes |1_{\vec{q}}\rangle$, $|S_e, S_h\rangle \otimes |1_{\vec{q}}, 1_{\vec{q}}\rangle$ et $|S_e, P_h\rangle \otimes |1_{\vec{q}}\rangle$ lorsque le rayon de la boîte quantique augmente (Fig. I.4.2(b)). L'amplitude en énergie des anti-croisements est de l'ordre d'une dizaine de meV pour les états à un phonon et de seulement quelques meV pour l'état à deux phonons. De fait, le régime de couplage fort entre paires électron-trou et phonons optiques conduit à un spectre d'absorption plus complexe que dans la partie (I.1.3.2) avec l'apparition d'au moins quatre transitions de force d'oscillateur importantes au lieu de la seule transition associée aux états $|P_e, P_h\rangle$ (Fig. I.4.3).

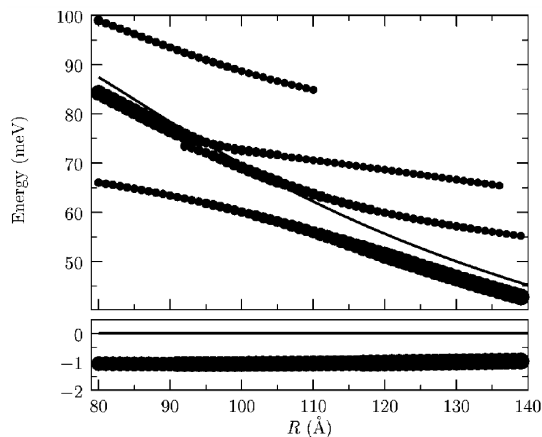


FIG. I.4.3 – Spectre d'absorption dans le régime du couplage fort aux phonons optiques, en fonction du rayon de la boîte quantique, d'après [45].

La présence d'états polaroniques à une énergie inférieure à celle d'un phonon optique est un élément clef pour la compréhension des mécanismes de décohérence assistés par phonons optiques. A ce stade de la discussion, il semble cependant contradictoire d'évoquer le concept de relaxation assistée par phonons optiques pour l'état fondamental d'une boîte quantique puisque les polarons sont les états stationnaires du système électron-phonon optique dans une boîte quantique. C'est l'anharmonicité des modes de vibration du cristal qui conduit à une durée de vie finie des phonons optiques et rend les états polaroniques instables. Dans GaAs massif, des mesures résolues en temps par diffusion Raman cohérente ont montré que le temps de vie des phonons optiques est de l'ordre de 10 ps à 10K et 2 ps à 300K et que ces temps caractéristiques sont associés aux processus de désintégration d'un phonon optique de centre de zone en un phonon LO et un phonon TA [65, 66].

Un traitement semi-classique de la dynamique des polarons donne un taux de relaxation de la population entre un état polaronique excité $|e_i\rangle$ et l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle \otimes |0\rangle$, égal à $\tau_{LO}^{-1}|\beta_i|^2$ où τ_{LO} est le temps de vie du phonon optique et β_i la composante de l'état $|S_e, S_h\rangle \otimes |1_{\vec{q}}\rangle$ dans l'état polaronique

excité $|e_i\rangle$ [44]. Ce résultat provient du fait que l'anharmonicité des modes de vibration ne concerne que les degrés de liberté du mouvement des ions dans la structure cristalline, ce qui, d'un point de vue formel, correspond à un opérateur d'interaction n'agissant que dans l'espace des états de phonon, sans modification des états électroniques. Le couplage entre un état polaronique excité $|e_i\rangle$ et l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle \otimes |0\rangle$ requiert alors une composante de $|e_i\rangle$ dont la partie électronique soit $|S_e, S_h\rangle$. Enfin, dans l'hypothèse où l'instabilité d'un phonon optique dans une boîte quantique correspond, comme dans GaAs massif, à la désintégration d'un phonon optique de centre de zone en un phonon LO et un phonon TA, il faut que la différence d'énergie entre les états polaroniques initial et final soit égale à la somme des énergies des phonons LO et TA émis. Compte tenu de la largeur de ces bandes de phonon, la conservation de l'énergie impose une fenêtre spectrale de [28 meV-45 meV] pour la distance en énergie entre états polaroniques fondamental et excité, condition réalisée pour une grande gamme de paramètres de boîtes quantiques (Fig. I.4.2).¹

Pour le processus inverse de passage de l'état fondamental $|e_0\rangle$ vers un état polaronique excité $|e_i\rangle$, le taux de relaxation est obtenu en multipliant $\tau_{LO}^{-1}|\beta_i|^2$ par le rapport des probabilités d'occupation des états polaroniques, qui est donné par $\exp(-(\epsilon_{|e_i\rangle} - \epsilon_{|e_0\rangle})/kT)$ dans l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique du réservoir des phonons non impliqués dans la formation des polarons. Finalement, l'élargissement de l'état fondamental associé à la diffusion vers des états polaroniques excités sous l'effet de l'anharmonicité des phonons optiques est donné par :

$$\Gamma(T) = \frac{\hbar}{\tau_{LO}} \sum_i |\beta_i|^2 \exp\left(-\frac{\epsilon_{|e_i\rangle} - \epsilon_{|e_0\rangle}}{kT}\right) \quad (\text{I.4.7})$$

où i indice les états polaroniques excités situés dans la fenêtre de relaxation [28 meV-45 meV].

Dans le cadre de notre discussion des processus de décohérence et de l'interprétation du terme $\gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$, une conséquence majeure de ce modèle est la possibilité d'obtenir des valeurs de l'énergie d'activation inférieures à l'énergie d'un phonon optique puisque la différence d'énergie entre l'état fondamental et le premier état polaronique excité est, par exemple, inférieure à 30 meV pour la gamme de paramètres géométriques utilisés dans les calculs de la figure I.4.2. Il est important de noter que l'effet du couplage fort n'est pas de créer de nouveaux états à une distance en énergie du fondamental inférieure à un phonon optique puisque les états non-habillés $|S_e, P_h^\pm\rangle$ et $|P_e^\pm, S_h\rangle$ se situent dans cette gamme spectrale et sont précisément responsables de la présence d'états polaroniques dans cette région du spectre. L'effet du couplage fort est de produire le mélange

¹Il est important de noter que l'anharmonicité des phonons optiques fournit dans ce cas un mécanisme de relaxation de population pour des états de paire électron-trou, alors que l'interaction avec les états croisés étudiée dans la partie (I.3) permet la relaxation séparée des électrons et des trous.

entre des états factorisés à zéro ou un phonon optique, qui, combiné à l'anharmonicité de ces modes de vibration, ouvre des transitions assistées par phonons optiques dans une gamme d'énergies inférieures à 36 meV.

En revanche, les valeurs obtenues pour le paramètre γ sont plus faibles d'un à deux ordres de grandeur par rapport à nos données expérimentales. D'après l'équation (I.4.7), la largeur anharmonique \hbar/τ_{LO} d'un phonon optique définit une borne supérieure aux valeurs prises par le paramètre γ , et cette largeur anharmonique est de 0.15 meV à 10K et 0.65 meV à température ambiante [65, 66] alors que le paramètre γ est typiquement de l'ordre de quelques dizaines de meV.

En conclusion, la prise en considération de l'existence d'un régime de couplage fort entre une paire électron-trou et les phonons optiques dans une boîte quantique ne permet qu'une explication partielle du terme de décohérence $\gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$, contribution dominante à la largeur de la raie à zéro phonon au-dessus de 50K. D'un côté, l'intrication des états factorisés à zéro ou un phonon combiné à l'anharmonicité des phonons optiques conduit à la prédiction d'énergies d'activation E_a inférieures à l'énergie d'un mode de phonon optique, effet subtile et remarquable puisque brisant le schéma d'un gap d'un phonon optique associé au processus d'absorption d'un phonon LO. Cependant, l'efficacité des processus de diffusion entre états polaroniques est trop faible d'un à deux ordres de grandeur par rapport aux données expérimentales. Ce désaccord montre l'insuffisance de ce modèle.

- *Processus quadratiques de déphasage par absorption-émission de phonons optiques*

Nous discutons à présent un modèle qui donne des résultats inverses sur le terme $\gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$ puisqu'il conduit aux bons ordres de grandeur pour l'efficacité γ des processus d'élargissement de la raie à zéro-phonon au-dessus de 50K, sans pouvoir cependant rendre compte de l'existence d'énergies d'activation E_a inférieures à l'énergie d'un phonon optique.

Dans la ref. [67], les auteurs considèrent des processus d'interaction électron-phonon LO du second ordre, dans un régime de couplage faible. L'absorption puis l'émission d'un phonon optique à partir de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ est un mécanisme de déphasage impliquant des transitions virtuelles entre états de paire électron-trou (Fig. I.4.4). Si nous comparons avec le modèle de Huang-Rhys discuté dans la partie (I.4.1.2) pour les phonons acoustiques, il s'agissait également dans ce cas de transitions virtuelles mais dans le cadre d'une interaction électron-phonon à l'ordre un, ce qui conduisait à des bandes latérales autour de la raie à zéro-phonon ; à présent, l'interaction électron-phonon est traitée à l'ordre deux et nous nous intéressons aux processus à deux transitions virtuelles pour lesquels les états électroniques initial et final ont la même énergie (Fig. I.4.4), et ces processus contribuent à l'élargissement de la raie à zéro-phonon.

Ce modèle prédit un élargissement de la raie à zéro-phonon en $\bar{n}(\bar{n}+1)$ jusqu'à 100K puis en $\sqrt{\bar{n}(\bar{n}+1)}$ au-dessus de 100K, où \bar{n} est le facteur de Bose-Einstein

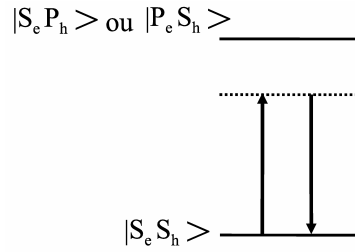


FIG. I.4.4 – Processus de déphasage de l'état fondamental du second ordre en l'interaction électron-phonon.

moyen pour les phonons optiques mis en jeu. Cette contribution à l'élargissement de la raie à zéro-phonon varie en $\exp\left(-\frac{E_{LO}}{kT}\right)$ en dessous de 100K, puis en $\exp\left(-\frac{E_{LO}/2}{kT}\right)$ au-dessus de 100K, où $E_{LO} \sim 36$ meV compte-tenu de la faible dispersion de la bande de phonons LO. Par ailleurs, les valeurs calculées pour l'énergie γ caractérisant l'efficacité de ces processus sont de l'ordre d'une dizaine de meV. Si nous comparons expérience et théorie à partir des paramètres γ et E_a , nous nous retrouvons dans une situation inverse de celle discutée précédemment pour le couplage fort, puisque l'ordre de grandeur des largeurs prédites est correct alors que les énergies d'activation ne le sont pas car elles restent déterminées par l'énergie d'un phonon optique.

La différence de un à deux ordres de grandeur entre les prévisions des modèles basés, qui sur des transitions réelles entre états polaroniques, qui sur des transitions virtuelles entre états électroniques, peut apparaître surprenante dans la mesure où l'interaction électron-phonon est traitée à l'ordre deux dans le deuxième cas [67]. Il ne faut cependant pas perdre de vue que l'élargissement de la raie à zéro-phonon n'a pas la même origine physique dans les deux cas. Pour le modèle de diffusion entre polarons, c'est l'anharmonicité qui joue le rôle clef alors que pour le modèle de déphasage du fondamental par couplage quadratique aux phonons, c'est l'interaction de Fröhlich qui est directement impliquée.

Un paramètre important des calculs effectués dans la Ref. [67] est la distance en énergie entre les états de paire électron-trou excités et l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$. L'efficacité du déphasage induit par les transitions virtuelles présente a priori une forte résonance lorsque les états mis en jeu sont distants de l'énergie d'un phonon optique. En conséquence, ce terme d'élargissement de la raie à zéro-phonon est susceptible de dépendre de la géométrie de la boîte quantique, mais cet aspect est malheureusement peu détaillé dans la Ref. [67], qui par ailleurs ne prend pas en considération l'existence d'un continuum d'états croisés 2D-0D. Alors qu'une variation avec la taille de la boîte quantique semble constituer une caractéristique de ce modèle, des résultats expérimentaux récents montrent au contraire une absence de corrélation entre l'énergie γ et le confinement des boîtes

quantiques [64]. L'influence des états de paire électron-trou excités (0D-0D ou 2D-0D) sur l'efficacité des transitions virtuelles reste un problème ouvert.

* * * * *

En résumé, aucun modèle ne décrit de manière quantitative l'élargissement de la raie à zéro-phonon au-dessus de 50K, qui est caractérisé par les énergies γ et E_a entrant dans le terme $\gamma \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$. Nous avons examiné tout d'abord la diffusion entre états polaroniques due à l'anharmonicité des modes de vibration optiques de la matrice cristalline, modèle qui rend compte de l'existence d'énergies d'activation E_a différentes de l'énergie d'un phonon LO sans cependant donner les bons ordres de grandeur pour l'efficacité γ des phénomènes d'élargissement. Puis, nous avons étudié le déphasage induit par un couplage quadratique en l'interaction électron-phonon qui, à l'opposé, donne le bon ordre de grandeur pour la largeur de la raie à zéro-phonon à haute température mais sans expliquer les valeurs des énergies d'activation. De la comparaison de ces deux modèles ressort l'hypothèse qu'un traitement complet de l'interaction de Fröhlich jusqu'à l'ordre deux pourrait permettre de concilier les deux approches et d'aboutir à une description quantitative des phénomènes de déphasage impliquant les phonons optiques.

Avant d'aborder le régime des faibles températures, il est intéressant de comparer de manière globale les effets du couplage aux phonons acoustiques et optiques dans les processus de décohérence de l'état de paire électron-trou fondamental $|S_e, S_h\rangle$. Dans le cadre de modèle de Huang-Rhys, nous avons montré que le couplage aux phonons acoustiques est responsable d'une déviation par rapport à un profil lorentzien avec des bandes latérales autour d'une raie à zéro-phonon, alors que l'interaction avec les phonons optiques conduit, entre autre, à un élargissement de cette raie centrale. Nous sommes face à une situation relativement originale en physique des semiconducteurs où les phonons optiques apportent une contribution aux processus de décohérence de l'état fondamental qui n'est pas dominante par rapport aux phonons acoustiques, voire inférieure dans la mesure où l'extension spectrale des ailes de phonons acoustiques est de l'ordre d'une dizaine de meV tandis que l'élargissement assisté par phonons optiques est de l'ordre de quelques meV.

L'ensemble de ces effets montrent que l'interaction avec la matrice cristalline est un phénomène absolument essentiel quand bien même nous nous intéressons à l'état fondamental d'une boîte quantique, qui offre a priori la situation la plus intéressante en terme de protection vis-à-vis des mécanismes de décohérence. De manière pragmatique, il apparaît qu'au-dessus de 50K, l'interaction avec les phonons acoustiques et optiques accélère la dynamique de décohérence, ce qui limite considérablement les possibilités de travailler dans le régime où la recombinaison radiative seule détermine le temps de décohérence. Qu'en est-il alors à plus basse température ?

La problématique des mécanismes de décohérence en dessous de 50K a déjà été partiellement énoncée plus haut (page 49) à partir de l'exemple de la boîte quantique étudiée sur la figure I.4.1. Nous avons fait le constat, d'une part que la largeur de la raie à zéro-phonon n'était pas limitée par la largeur naturelle à température nulle alors que l'état fondamental n'est pas en résonance avec un quasi-continuum d'états croisés, et, que d'autre part Γ_{ZPL} présentait une augmentation linéaire avec la température comparable à celle observée pour l'état excité pour $T < 50\text{K}$, alors que nous avons déjà tenu compte de l'interaction avec les phonons acoustiques dans la modélisation des bandes latérales.

Pour comprendre les mécanismes responsables de la décohérence de l'état fondamental à basse température, nous avons réalisé des études systématiques sur des boîtes quantiques InAs/GaAs provenant de différents laboratoires et nous avons mis en évidence une grande dispersion des valeurs des paramètres Γ_{ZPL}^0 et α caractérisant l'élargissement de la raie à zéro-phonon (Eq. I.4.6). Avant de présenter ces résultats, remarquons que notre technique de spectroscopie sur boîte quantique unique présente l'avantage sur les techniques non-linéaires d'écho de photons sur un ensemble de boîtes quantiques [58], de ne pas moyenniser l'information, ce qui révèle les différences entre boîtes quantiques et nous permet de résoudre la distribution statistique des paramètres Γ_{ZPL}^0 et α , élément essentiel pour identifier leur origine physique.

I.4.2.2 Influence des phonons acoustiques

Nous présentons tout d'abord une étude comparative de l'évolution de la largeur de la raie à zéro-phonon en fonction de la température sur des boîtes quantiques de deux échantillons, appelés A et B, provenant respectivement de l'université de Würzburg (J.P. Reithmaier) et du CNET-Bagneux (J.M. Gérard). Ces expériences requièrent une très haute résolution spectrale pour mesurer la largeur de la raie à zéro-phonon qui atteint des valeurs de quelques μeV à basse température, bien en-dessous des résolutions spectrales accessibles par spectroscopie par réseau de diffraction. Nous avons développé une technique originale de spectroscopie par transformée de Fourier avec une résolution de l'ordre du μeV , qui nous a permis d'effectuer les premières mesures du temps de décohérence sur la transition fondamentale de boîtes quantiques uniques [62, 63, 38].

Sur la figure I.4.5(a) sont présentés des résultats typiques des largeurs de la raie à zéro-phonon mesurées sur les deux échantillons. Les données expérimentales (symboles) sont correctement reproduites (traits pleins) à l'aide de l'équation (I.4.6) comprenant un terme exponentiel avec la température, dominant au-dessus de 50K, qui a été discuté dans le paragraphe précédent sur l'interaction avec les phonons optiques, ainsi qu'une partie affine, dominante en-dessous de 50K, dont l'étude fait l'objet du paragraphe présent. Nous remarquons d'emblée une

différence importante entre les deux échantillons puisque la boîte quantique de l'échantillon A a une raie à zéro-phonon plus large que celle de l'échantillon B, qu'il s'agisse de la limite à température nulle ($\Gamma_{ZPL}^0=110\pm 10$ contre $18\pm 2 \mu\text{eV}$) ou de l'augmentation linéaire dans le régime basse température ($\alpha=1.3\pm 0.2$ contre $0.05\pm 0.02 \mu\text{eV.K}^{-1}$).

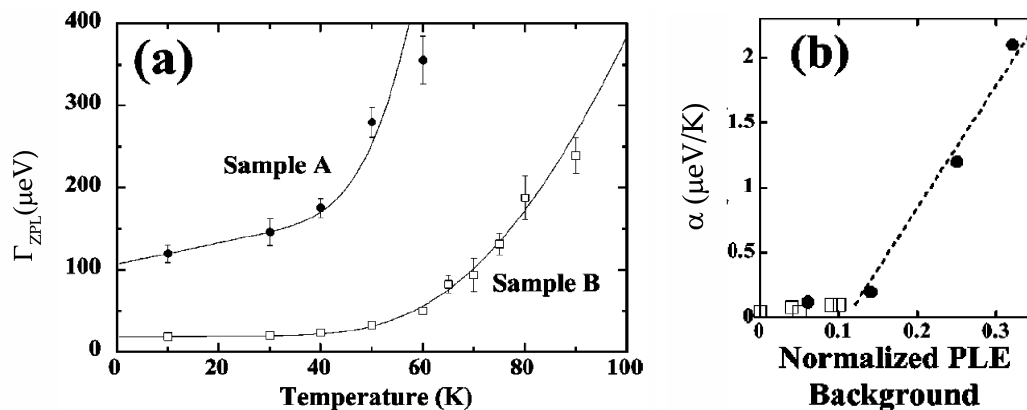


FIG. I.4.5 – (a) Largeur de la raie à zéro-phonon pour deux boîtes quantiques d'échantillons différents en fonction de la température. (b) Pente de la partie linéaire ($T < 50\text{K}$) pour une dizaine de boîtes quantiques des deux échantillons (ronds pleins et carrés vides pour les échantillons A et B, respectivement) en fonction de l'intensité normalisée du fond, à $+10 \text{ meV}$ de l'énergie de l'état fondamental correspondant, dans le spectre d'excitation de la photoluminescence, d'après [63].

Une étude systématique du paramètre α sur une dizaine de boîtes quantiques montre que les valeurs sont petites avec une faible dispersion pour l'échantillon A ($0.05 \leq \alpha \leq 0.1 \mu\text{eV.K}^{-1}$) alors que pour l'échantillon B, α varie entre 0.12 et $2.1 \mu\text{eV.K}^{-1}$. A titre de comparaison, rappelons que, pour les états excités, l'augmentation linéaire avec la température en dessous de 50K , est caractérisée par des pentes de plusieurs dizaines de $\mu\text{eV.K}^{-1}$ (Fig. I.3.2, où il s'agit de boîtes quantiques de l'échantillon B). Si nous faisons abstraction de cette différence de deux à trois ordres de grandeur entre états excités et état fondamental, l'observation d'une même augmentation linéaire avec la température suggère une origine identique aux phénomènes d'élargissement observés dans le régime des basses températures. Dans la continuité de l'analyse des données effectuée pour les états excités, nous examinons sur la figure I.4.5(b) les corrélations entre les valeurs du paramètre α et l'intensité normalisée du fond dans le spectre d'excitation de la photoluminescence. Contrairement aux états excités, il n'est pas possible d'en obtenir une estimation à l'énergie de l'état fondamental. En effet, les expériences d'excitation de la photoluminescence sont réalisées avec une détection à cette énergie et lorsque le laser d'excitation est à la résonance avec

l'état fondamental, la diffusion du laser domine complètement le signal. C'est la raison pour laquelle l'intensité normalisée du fond est estimée à +10 meV de l'énergie de l'état fondamental, i.e. le plus près possible en énergie dans nos expériences sur boîtes quantiques uniques.

Comme pour les états excités, nous constatons une forte corrélation entre l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement et l'intensité normalisée du fond dans le spectre d'excitation de la photoluminescence, et ce quelque soit l'échantillon d'origine (Fig. I.4.5(b)). Les mécanismes d'élargissement de la raie à zéro-phonon sont-ils les mêmes que pour les états excités ? S'agit-il d'une diffusion assistée par phonons acoustiques vers des états croisés 2D-0D dont la densité d'états est reliée à l'intensité du fond mesuré en spectroscopie d'excitation de la photoluminescence ?

La transposition de l'interprétation présentée dans la partie (I.3.2) pour les états excités n'est cependant pas possible pour l'état fondamental dans la mesure où le quasi-continuum des états croisés a une densité d'états nulle à l'énergie de l'état $|S_e, S_h\rangle$. Quelles peuvent être les origines de ces processus de déphasage ? L'interaction avec les phonons acoustiques est-elle responsable des phénomènes observés, par le biais de mécanismes différents de ceux discutés jusqu'à présent ? Ces questions nourrissent la problématique de la décohérence de l'état fondamental à basse température, aspect tout à fait essentiel puisque la gamme des températures inférieures à 50K est a priori la seule où les effets de bandes latérales de phonons acoustiques et d'élargissement assisté par phonons optiques restent faibles. Plusieurs modèles basés sur l'interaction avec les phonons acoustiques ont récemment été proposés pour interpréter les résultats sur l'état fondamental.

- *Processus quadratiques de déphasage par absorption-émission de phonons acoustiques*

Dans la Ref. [68], Muljarov et Zimmermann examinent le déphasage induit par un couplage quadratique en l'interaction électron-phonon acoustique. Il s'agit exactement des processus à deux transitions virtuelles, discutés dans la partie (I.4.2.1) et pour lesquels les états électroniques initial et final ont la même énergie (Fig. I.4.4), à la différence qu'il s'agit maintenant de l'absorption et l'émission de phonons acoustiques. Dans la Ref. [68], l'interaction électron-phonon acoustique est traitée jusqu'à l'ordre deux, ce qui permet d'avoir -à l'ordre un- les effets de bandes latérales de phonons acoustiques du modèle de Huang-Rhys (voir partie (I.4.1.2)), et -à l'ordre deux- l'élargissement de la raie centrale à zéro-phonon.

Une régression linéaire de l'élargissement de la raie à zéro-phonon calculé dans la Ref. [68] donne des valeurs de α de l'ordre de $0.2 \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$, en bon accord avec les mesures effectuées par écho de photons sur un ensemble de boîtes quantiques [58] ainsi que pour un certain nombre de nos boîtes quantiques. Comme dans l'article sur le couplage quadratique aux phonons optiques [67], il n'y a malheureusement pas de discussion sur la valeur utilisée dans le calcul pour la

distance en énergie entre les états excités et l'état fondamental. Ce paramètre est cependant crucial pour l'efficacité de ces processus de déphasage et sa donnée serait très utile pour l'interprétation de nos expériences sur boîtes quantiques uniques, qui révèlent une grande dispersion du paramètre α ainsi qu'une corrélation avec la densité d'états résiduelle au voisinage de l'état fondamental.

Ces succès apparents du modèle de couplage quadratique aux phonons acoustiques doivent néanmoins être reconsidérés à la lumière des expériences effectuées sur une série d'échantillons de boîtes quantiques avec un confinement quantique variable [64]. En faisant varier la température du recuit des boîtes quantiques, il est en effet possible de contrôler la diffusion de l'indium, ce qui modifie les énergies de confinement et permet de faire varier la distance en énergie entre les états excités et fondamental de 25 à 70 meV. Alors que l'efficacité des processus de déphasage du second ordre varie suivant l'inverse du carré de la distance en énergie entre états excités et fondamental, aucune variation n'est mesurée sur la thermo-activation des processus d'élargissement dans les différents échantillons de boîtes quantiques avec recuit [64]. D'autre part, dans des travaux récents de Muljarov et Zimmermann sur la contribution respective des processus réels à l'ordre un et virtuels à l'ordre deux en fonction de la distance en énergie entre états excités et fondamental, des valeurs particulièrement faibles sont calculées par rapport à la Ref. [68] : le couplage quadratique aux phonons acoustiques conduit à une largeur de la raie à zéro-phonon de 1 μ eV à 100K pour des états excités distants de seulement 5 meV de l'état $|S_e, S_h\rangle$ [69].

En résumé, le déphasage induit par un couplage quadratique en l'interaction électron-phonon acoustique apporte une contribution thermo-activée à l'élargissement de la raie à zéro-phonon qui augmente quasi-linéairement avec la température. L'accord avec les résultats expérimentaux reste cependant qualitatif et le problème de l'écart en énergie entre l'état $|S_e, S_h\rangle$ et les états de paire électron-trou excités (0D-0D ou 2D-0D) ne nous permet pas d'identifier ces processus virtuels d'ordre deux comme responsables de l'élargissement de la raie à zéro-phonon dans le régime des basses températures.

- *Temps de vie des phonons acoustiques*

L'anharmonicité des vibrations du cristal est responsable d'un temps de vie fini pour les phonons optiques et acoustiques et nous avons discuté dans la partie (I.4.2.1) l'influence de ces phénomènes sur l'élargissement de la raie à zéro-phonon assisté par phonons optiques. Le temps de vie fini des phonons acoustiques conduit également à un élargissement de la raie à zéro-phonon. En effet, bien que la raie à zéro-phonon soit déterminée par le processus de recombinaison radiative sans échange net d'énergie avec le réservoir de phonons, l'émission de photons à l'énergie de l'état $|S_e, S_h\rangle$ peut se produire avec émission et absorption de plusieurs phonons dont les énergies se compensent. De fait, l'anharmonicité des modes acoustiques de vibration du cristal contribue à l'élargissement de la raie à zéro-phonon .

L'inclusion d'un temps de vie fini des phonons acoustiques dans le modèle de Huang-Rhys a été proposée de manière phénoménologique dans la Ref. [70] à partir de considérations macroscopiques sur l'effet Grüneisen, qui établit une correspondance entre les fluctuations de vitesse du son et de volume d'un matériau. Cet effet conduit à une dépendance en température de l'élargissement assisté par phonons acoustiques en T^4 , en faible accord avec les résultats expérimentaux.

Une autre source d'anharmonicité est la rugosité des interfaces des mesas, dont la gravure permet de réduire localement la densité surfacique de boîtes quantiques dans les expériences sur boîte quantique unique. Dans la Ref. [71], les auteurs mettent en évidence une corrélation entre la taille latérale des mesas et l'efficacité de la thermo-activation de l'élargissement de la raie à zéro-phonon. Plus petite est la mesa, plus importante est l'augmentation linéaire de la largeur de raie, avec des paramètres α de l'ordre de quelques $\mu\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$ pour des tailles latérales inférieures à $1\ \mu\text{m}$. Les auteurs interprètent ces résultats à partir d'une évaluation du taux d'amortissement des phonons acoustiques par le modèle de Ziman, qui permet de quantifier l'anharmonicité induite par une surface rugueuse de corrugation caractéristique δ . A partir de clichés au microscope électronique, ils évaluent cette distance caractéristique δ à $12\ \text{nm}$ pour les faces latérales de la mesa et à $1\ \text{nm}$ pour la face supérieure qui n'a pas subi de gravure. L'interprétation d'un élargissement en température plus élevé dans les petites mesas s'articule autour d'une considération de proximité des boîtes quantiques par rapport aux bords latéraux : plus la mesa est grande, moins la boîte quantique sent la rugosité des interfaces gravées et une borne inférieure de $0.5\ \mu\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$ est déterminée. Ce travail est critiquable à plusieurs points de vue. Tout d'abord, la position des boîtes quantiques à l'intérieur des mesas n'est absolument pas connue de sorte que la proximité de la boîte quantique vis-à-vis des bords gravés ne diminue pas nécessairement dans les grandes mesas. D'autre part, ce modèle ne permet pas d'expliquer la mesure de paramètres α plus faibles que la borne inférieure de $0.5\ \mu\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$ dans des mesas submicroniques [62], et inversement des paramètres α plus élevés que $0.5\ \mu\text{eV}\cdot\text{K}^{-1}$ dans des échantillons sans mesas [57, 72].

* * * * *

En résumé, nous avons examiné deux mécanismes d'élargissement assistés par phonons acoustiques basés sur l'existence d'un temps de vie des phonons acoustiques. Qu'il s'agisse de l'anharmonicité du matériau massif [70], ou de celle induite par la gravure des mesas [71], nous n'aboutissons pas à un accord quantitatif avec les résultats présents dans la littérature. Si ces effets participent vraisemblablement à l'élargissement en température de la raie à zéro-phonon, il ne s'agit cependant pas d'une contribution majoritaire.

Plus généralement, nous concluons ce paragraphe sur le constat que la variété des comportements observés à basse température sur des boîtes quantiques étudiées dans des mesas [56, 62, 63], à travers des masques [57, 72] ou dans des

ensembles [58, 64, 73], n'est pas expliquée de manière quantitative et complète à partir de mécanismes d'élargissement assisté par phonons acoustiques. Un effet n'impliquant pas de manière directe les phonons acoustiques reste à identifier et nous discutons à présent de résultats complémentaires indiquant la présence de mécanismes extrinsèques de décohérence.

I.4.2.3 Interaction coulombienne avec l'environnement

Revenons sur les conditions expérimentales dans lesquelles les études de largeur de la raie à zéro-phonon ont été effectuées pour la figure I.4.5 page 58. Les mesures ont été faites dans un régime d'excitation où l'intensité de photoluminescence de la transition fondamentale varie linéairement avec la puissance d'excitation ; néanmoins, l'intensité du signal de photoluminescence étant relativement faible sur cet échantillon, nous nous sommes placés au voisinage de la saturation de la raie. Nous avons vérifié que les temps de décohérence mesurés ne changeaient pas en saturant la transition fondamentale, i.e. en augmentant la puissance d'excitation d'un facteur deux ou trois.

Dans le cadre de la thèse d'Ivan Favero, de nouvelles études de la décohérence de l'état $|S_e, S_h\rangle$ ont été menées sur un échantillon de boîtes quantiques avec un signal de photoluminescence typiquement un ordre de grandeur plus élevé, grâce à la présence d'un miroir en or placé sous le plan de boîtes quantiques. Nous sommes ainsi en mesure d'étudier de manière plus précise les variations en puissance de la largeur de la raie à zéro-phonon sans être limités au régime d'excitation proche de la saturation [74]. Ces études montrent que la thermo-activation de l'élargissement de la raie à zéro-phonon a une efficacité qui peut dépendre de la densité d'excitation, ce qui revient à avoir, dans l'équation (I.4.6), un coefficient α qui dépend de la puissance.

Un exemple d'une étude systématique des variations de la largeur de la raie à zéro-phonon en fonction de la puissance et de la température est donné sur la figure I.4.6. Nous constatons qu'à 10K, la largeur de raie est de $20 \mu\text{eV}$ à faible puissance, puis elle montre une forte augmentation avec la puissance d'excitation au voisinage de la saturation de l'état fondamental, et enfin la largeur de la raie à zéro-phonon sature à $120 \mu\text{eV}$ à très forte excitation. Lorsque la température augmente, l'amplitude des variations en puissance diminue avec un accroissement de la largeur de raie à faible excitation, tandis que la valeur dans le régime de saturation reste constante à notre erreur expérimentale près. A 50K, nous n'observons plus d'élargissement en puissance de la raie à zéro-phonon. A partir de 60K, les mécanismes de décohérence assistés par phonons optiques sont de plus en plus efficaces et leur activation contribue à élargir la raie à zéro-phonon au-delà des $120 \mu\text{eV}$ mesurés à forte densité d'excitation. Avec une régression linéaire de l'élargissement en température jusqu'à 50K, nous obtenons un paramètre α qui dépend de la puissance d'excitation avec une valeur nulle à notre précision

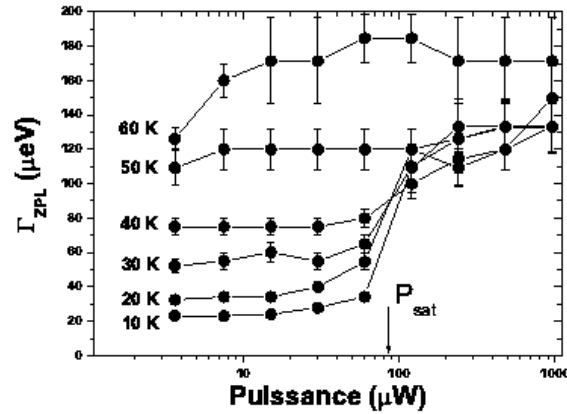


FIG. I.4.6 – Largeur de la raie à zéro-phonon en fonction de la puissance d’excitation, pour des températures allant de 10 à 60K et une excitation à 1.99 eV dans la barrière de GaAs, d’après [75].

expérimentale près à forte puissance et une valeur de $2 \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ à basse puissance.

A partir des résultats de la figure I.4.6, nous mettons en évidence que la décohérence de l’état fondamental dans le régime des basses températures ($T \leq 50\text{K}$) n’est pas uniquement déterminée par la température mais par d’autres paramètres comme la puissance d’excitation. Ce nouvel aspect de notre étude nous indique que l’environnement d’une boîte quantique ne se limite pas - outre les modes du champ électromagnétique- aux seuls modes de vibration de la matrice cristalline. Nous allons voir que l’environnement électrostatique est également susceptible d’influencer les propriétés électroniques et optiques de la boîte quantique et nous proposons une interprétation de nos résultats expérimentaux à partir d’un modèle basé sur l’interaction coulombienne entre les états de paire électron-trou confinés dans la boîte quantique et des charges environnantes dont les configurations spatiales fluctuent.

Tout d’abord, si nous considérons le problème statique de la détermination de l’énergie de la transition fondamentale d’une boîte quantique avec un défaut à proximité, nous déterminons une énergie caractéristique Λ du problème, définie par la différence d’énergie $E_1 - E_0$ de l’état $|S_e, S_h\rangle$ en l’absence (E_0) ou en présence (E_1) d’un électron dans le défaut (Fig. I.4.7(a)&(b)). Cette énergie Λ correspond au décalage Stark induit par le champ électrique produit par la charge électronique à proximité de la boîte quantique. Pour un défaut situé à quelques dizaines de nm de la boîte quantique, Λ est de l’ordre de quelques μeV [17].

Dans une approche dynamique du problème où le piégeage et le dépiégeage d’un électron dans un défaut environnant se produisent avec des temps caractéristiques respectifs τ_p et τ_d , l’interaction coulombienne entre la paire électron-trou confinée dans la boîte quantique et l’électron du défaut peut conduire à

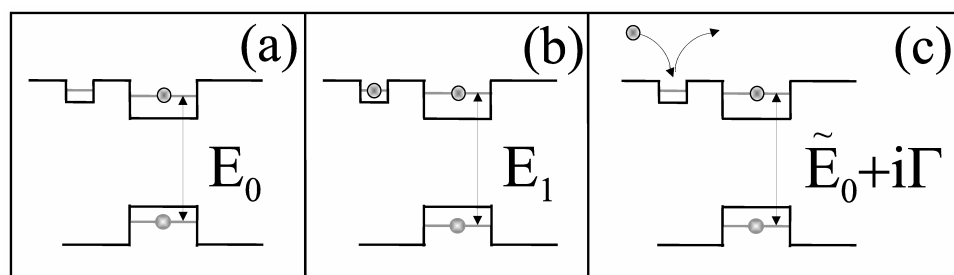


FIG. I.4.7 – Energie de la transition fondamentale d’une boîte quantique, (a) sans électron piégé, (b) avec un électron piégé, (c) en régime dynamique avec piégeage et dépiégeage de l’électron dans le défaut.

un élargissement de la transition fondamentale [17, 75]. Plus précisément, dans un modèle à N pièges équivalents au voisinage de la boîte quantique, l’écart quadratique moyen $\Sigma = \sqrt{\Delta\Lambda^2}$ caractérise les fluctuations des décalages Stark induites par les changements de configuration des porteurs dans l’environnement de la boîte quantique. Deux cas limites sont à distinguer suivant la valeur du rapport Σ/γ_0 où γ_0 est l’énergie caractéristique associée aux processus de piégeage et dépiégeage, i.e. $\gamma_0 = \hbar(\tau_p^{-1} + \tau_d^{-1})$. Lorsque $\Sigma/\gamma_0 \gg 1$, la boîte quantique est dans un régime de fortes perturbations, avec une grande accumulation de phase sous l’action du hamiltonien d’interaction produisant les fluctuations de l’énergie de la transition optique [59]. Dans ce cas, le profil de raie est déterminé par l’écart quadratique moyen des fluctuations de décalage Stark : la raie a un profil spectral gaussien et une largeur $\Gamma_{ZPL} = \Sigma$. Dans la limite inverse dite des faibles perturbations $\Sigma/\gamma_0 \ll 1$, les deux paramètres Σ et γ_0 déterminent le profil de raie, qui est lorentzien avec une largeur $\Gamma_{ZPL} = \Sigma^2/\gamma_0$, soit une valeur Σ/γ_0 plus petite que le simple écart quadratique moyen des fluctuations d’énergie. Cet effet de rétrécissement correspond au phénomène de motional narrowing, dont de nombreux exemples sont connus dans d’autres systèmes physiques, avec entre autres, la relaxation de spin en résonance magnétique nucléaire [76], l’élargissement des transitions de vibration-rotation en physique moléculaire [77], ou encore plus proche de nos préoccupations l’élargissement assisté par phonons optiques décrit dans la Ref. [67] sur la base d’un couplage quadratique électron-phonon (où le temps de collision \hbar/γ_0 correspond alors au temps de vie des phonons optiques et Σ varie en $\sqrt{\bar{n}(\bar{n} + 1)}$, voir page 55).

Les résultats expérimentaux de la figure I.4.6 ont été obtenus sur une boîte quantique dont la transition fondamentale a un profil de raie lorentzien, comme un grand nombre de boîtes quantiques étudiées dans nos échantillons. L’interprétation de ces données à partir du modèle présenté ci-dessus nous indique que nous nous trouvons dans un régime de rétrécissement par le mouvement, à l’opposé des travaux montrant un scintillement [78, 79] ainsi qu’une diffusion spectrale de la

raie d'émission [80]. Ces dernières situations correspondent à un régime original de fortes perturbations où le temps de collision \hbar/γ_0 est plus grand que le temps d'intégration du détecteur, de sorte que les fluctuations des décalages Stark peuvent être résolues en fonction du temps sur des échelles de quelques centaines de ms [80].

Nous donnons à présent une interprétation qualitative de l'augmentation avec la puissance et la température de la raie à zéro-phonon. A température nulle, tous les défauts au voisinage de la boîte quantique sont occupés : le système {boîte quantique + environnement} est figé et les fluctuations de densité de charge sont quasi-nulles. Lorsque la température augmente, des pièges se libèrent et des événements de piégeage/dépiégeage d'un électron dans un défaut deviennent possibles. Lorsque l'énergie thermique atteint l'énergie de liaison moyenne des défauts, Σ sature à une valeur déterminée par le nombre total de pièges. De la même manière, si nous examinons la dépendance en puissance d'excitation à 10K, tous les défauts sont occupés à basse puissance. Lorsque la densité d'excitation augmente, des événements de piégeage/dépiégeage se produisent avec un seuil d'activation qui se situe au voisinage de la saturation de l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ (Fig. I.4.6). Des effets Auger entre les porteurs localisés dans les défauts et ceux délocalisés dans la couche de mouillage ou la barrière de GaAs peuvent contribuer à augmenter le nombre de défauts participant aux fluctuations de l'environnement de la boîte quantique, et ainsi élargir la raie à zéro-phonon jusqu'à une valeur maximale Γ_{ZPL}^{sat} . Le fait que la largeur de la raie à zéro-phonon à forte puissance à 10K, coïncide avec la valeur constante de Γ_{ZPL} à 50K suggère que la saturation du nombre de pièges participant à l'élargissement est atteinte dans les deux cas. La valeur de la température à partir de laquelle Γ_{ZPL} ne dépend plus de la puissance nous permet d'estimer la valeur moyenne de l'énergie de liaison des défauts, soit un peu moins de 5 meV pour la boîte quantique de la figure I.4.6 ; pour une autre boîte quantique [74], une valeur légèrement plus petite a été trouvée (3 meV).

Des mécanismes de déphasage par interaction coulombienne entre les porteurs dans la boîte quantique et dans son environnement nous permettent d'interpréter de manière qualitative la dynamique de décohérence à basse température. A partir de l'exemple de la figure I.4.6 où les variations en température et en puissance sont liées, nous voyons qu'il est nécessaire de minimiser ces deux paramètres expérimentaux pour atteindre la largeur de la raie à zéro-phonon la plus faible possible, et ainsi espérer s'approcher de la limite radiative. Nous constatons cependant que Γ_{ZPL} à faibles température et puissance reste supérieure à la largeur radiative de l'ordre du μeV , puisque sur la figure I.4.6, la valeur minimale de Γ_{ZPL} est de 20 μeV , la plus petite valeur que nous ayons mesurée sur l'ensemble des boîtes quantiques examinées dans le cadre de cette étude étant de 6 μeV . La limite radiative n'est donc toujours pas atteinte ce qui indique la présence de processus de déphasage même à basses température et puissance d'excitation.

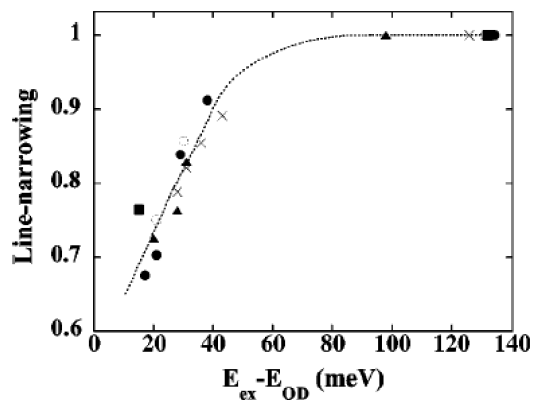


FIG. I.4.8 – Largeur de la raie à zéro-phonon normalisée à sa valeur pour une excitation dans la couche de mouillage, en fonction de l'écart en énergie entre l'état fondamental et le laser d'excitation, pour quatre boîtes quantiques, d'après [63].

Il existe un autre paramètre expérimental qui permet d'obtenir un rétrécissement de la raie à zéro-phonon. Nous avons mis en évidence que l'énergie du laser d'excitation joue un rôle important dans l'efficacité des processus de déphasage [62]. Alors que les données de la figure I.4.6 sont obtenues pour une excitation dans la barrière de GaAs, nous avons montré sur plusieurs boîtes quantiques, par des expériences sous excitation résonante des états excités, que la largeur de la raie à zéro-phonon mesurée à 10K présente systématiquement une diminution lorsque l'écart en énergie entre le laser et l'état fondamental diminue (Fig. I.4.8). Si Γ_{ZPL} est normalisée à sa valeur pour une excitation dans la couche de mouillage, nous constatons qu'un rétrécissement de raie de plus de 30% est obtenu pour un désaccord de 20 meV. Ces résultats suggèrent que c'est avec une excitation strictement résonante que la limite d'un élargissement purement radiatif est accessible ($T_2=2T_1$).

Dans le cadre du modèle d'élargissement par interaction coulombienne, nous interprétons ce phénomène de rétrécissement de raie par une réduction des fluctuations de l'environnement due à une injection spatiale de plus en plus sélective des porteurs photo-crées : plus l'énergie du laser est proche de celle de l'état fondamental, moins le quasi-continuum des états croisés 2D-0D est excité, ce qui entraîne une diminution du nombre de porteurs délocalisés dans la couche de mouillage et susceptibles d'activer le dépiégeage/piégeage d'un électron dans un défaut.

Si des expériences de photoluminescence sous excitation strictement résonante de l'état fondamental sont très difficiles parce que la diffusion élastique du laser masque complètement le signal de photoluminescence de la boîte quantique, la technique d'absorption sur boîte quantique unique a récemment permis d'at-

teindre des largeurs de raie extrêmement faibles, à la limite de l'élargissement radiatif [81]. Par ailleurs, dans des expériences d'écho de photons sous excitation résonante d'un ensemble de boîtes quantiques, les temps de décohérence mesurés sont de l'ordre de plusieurs centaines de ps [58, 73], voire de l'ordre de la ns sur certains échantillons [82], soit à nouveau très proches de la limite radiative.

En résumé, à très basse température, le ralentissement de la dynamique de décohérence requiert la réduction du nombre de porteurs délocalisés dans la couche de mouillage, soit par le biais d'une diminution de la puissance sous excitation non-résonante (Fig. I.4.6), soit par le biais d'une excitation quasi-résonante (Fig. I.4.8) voire strictement résonante [81, 82]. C'est dans cette dernière configuration seulement que l'observation d'un élargissement de la raie à zéro-phonon limitée par la largeur naturelle a pu jusqu'à présent être réalisée. Cependant, une excitation strictement résonante ne permet pas de s'affranchir d'une thermo-activation de l'élargissement dans le régime des basses températures [64]. Dans cette dernière référence, les auteurs évaluent une énergie d'activation de l'ordre de 6 meV qui ne dépend pas du régime de confinement des boîtes quantiques, et qui est par ailleurs tout à fait comparable à l'énergie caractéristique que nous avons déduite de nos études systématiques présentées sur la figure I.4.6. Dans le cadre du modèle de déphasage par interaction coulombienne entre les porteurs localisés dans la boîte quantique d'une part et d'autre part les porteurs localisés dans son environnement, cette énergie caractéristique correspond à l'énergie de liaison moyenne des défauts au voisinage de la boîte quantique. Quand bien même les boîtes quantiques sont pompées en résonance avec leur transition fondamentale dans des expériences de mélange à quatre ondes, l'excitation d'un ensemble de boîtes quantiques avec un spectre d'excitation large, d'une dizaine de meV, permet d'activer les fluctuations de densité de charge au voisinage de chaque boîte quantique.

En conséquence, s'il est possible de s'affranchir à très basse température des effets de déphasage coulombien en réalisant une excitation strictement résonante, leur thermo-activation semble constituer le facteur limitant à la dynamique de décohérence dans la gamme de température allant jusqu'à 50K.

I.4.3 Conclusion

A la différence des états excités, l'état fondamental d'une boîte quantique est bien isolé spectralement du quasi-continuum des états croisés 2D-0D, de sorte qu'une dynamique de décohérence limitée seulement par la recombinaison radiative est attendue. Il s'avère que la décohérence de l'état fondamental reste largement déterminée par l'interaction électron-phonon et que l'interaction coulombienne avec des porteurs au voisinage de la boîte quantique joue un rôle prépondérant.

Tout d'abord, nous avons montré que le couplage aux phonons acoustiques

par le biais de transitions virtuelles à l'ordre un brise le modèle d'un système à deux niveaux. L'existence d'un profil de raie non-lorentzien avec des bandes latérales est quantitativement expliquée par la théorie de Huang-Rhys, qui à cet ordre ne rend cependant pas compte de l'élargissement de la raie à zéro-phonon.

Dans le régime des hautes températures ($T > 50\text{K}$), la largeur de la raie à zéro-phonon est déterminée par le couplage aux phonons optiques. Même si aucune description quantitative et complète n'est actuellement formulée, nous avons examiné la diffusion entre états polaroniques due à l'anharmonicité des modes de vibration optiques ainsi que le couplage quadratique en l'interaction électron-phonon optique, deux modèles qui permettent d'interpréter -séparément- les différentes caractéristiques de l'élargissement de la raie à zéro-phonon à haute température. Par ailleurs, il faut noter que l'anharmonicité des phonons optiques fait apparaître un mécanisme de relaxation de population pour des états de paire électron-trou, alors que l'interaction avec les états croisés étudiée dans la partie (I.3) ne permet que la relaxation séparée des électrons et des trous.

Dans le régime des basses températures ($T < 50\text{K}$), nous avons montré que les processus de déphasage assistés par phonons acoustiques jouent a priori un rôle secondaire, qu'ils proviennent du couplage quadratique en l'interaction électron-phonon acoustique ou de l'anharmonicité des modes de vibration acoustiques. En revanche, nous avons mis en évidence que le déphasage induit par une interaction coulombienne avec des porteurs au voisinage de la boîte quantique constitue le facteur limitant à la réduction de la largeur de la raie à zéro-phonon. Si une excitation strictement résonante permet de s'affranchir de ces processus à température nulle et d'atteindre la limite de la largeur radiative, la thermo-activation du déphasage coulombien apporte une limite à la décohérence dans le régime des basses températures.

Les conséquences de ces résultats pour la physique des boîtes quantiques sont assez contrastées. Le rôle prépondérant joué par les ailes de phonons acoustiques détermine la largeur homogène d'une boîte quantique à température ambiante (de l'ordre d'une dizaine meV). Dans les lasers à boîtes quantiques, les enjeux de la croissance se situent au niveau de l'uniformité des ensembles de boîtes quantiques ; notre étude montre que la largeur homogène d'une dizaine de meV à température ambiante fixe une borne inférieure à la largeur spectrale de la courbe de gain qu'il est possible d'atteindre par réduction de la largeur inhomogène. Dans le cadre de l'information quantique, l'élargissement de la transition fondamentale ne pose pas de problème pour la distribution de clef en cryptographie quantique, puisqu'il n'affecte pas la statistique d'émission sub-poissonienne, et c'est la diminution de l'intensité du signal de photoluminescence avec la température qui est alors problématique. Pour la manipulation cohérente de bits quantiques, l'obtention de temps de décohérence les plus longs possibles se heurte au double problème des bandes latérales de phonons acoustiques (qui conduisent à une composante temporelle rapide, de quelques ps) et de l'élargissement de la raie

à zéro-phonon, ce qui limite le fonctionnement aux très basses températures. Enfin, pour la coalescence de photons indiscernables et la réalisation de portes quantiques optiques, c'est spécifiquement l'écart à la situation d'un régime de décohérence limité par la recombinaison radiative qui compte. La stratégie qui consiste à diminuer le temps de vie radiatif pour rendre marginaux les processus de déphasage dans la dynamique de décohérence [83] semble particulièrement adaptée pour contourner les mécanismes extrinsèques d'élargissement associés à la thermo-activation du déphasage coulombien ; subsistent néanmoins les effets intrinsèques de bandes latérales de phonons acoustiques dont l'extension spectrale de quelques meV reste grande même pour des boîtes quantiques avec un fort effet Purcell [84].

I.5 Structure fine de l'état fondamental

Les différents aspects du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique que nous avons discutés dans les parties précédentes, ont été analysés et critiqués à partir d'études spectroscopiques qui ne sont pas résolues en polarisation. Afin d'aborder les propriétés électroniques et optiques reliées au degré de liberté de spin des états électroniques, il est nécessaire de caractériser la réponse optique d'une boîte quantique en fonction de la polarisation des ondes électromagnétiques excitatrice ou émise.

Pour une boîte quantique neutre, le modèle simple que nous avons présenté dans la partie (I.1) prédit une structure fine de la transition fondamentale composée de quatre états de paire électron-trou dégénérés, avec deux états noirs et deux états brillants couplés à des ondes électromagnétiques polarisées circulairement droite et gauche. C'est à partir de ce schéma qu'ont été proposées des applications en cryptographie quantique, basées sur l'émission de paires de photons intriquées en polarisation par la recombinaison radiative en cascade des états excitonique et bi-excitonique [34]. La dégénérescence des états brillants est un élément clef dans ce protocole de génération d'états non-classiques. Son existence effective dans une boîte quantique de semiconducteurs est un point essentiel dans l'étude de la structure fine de l'état fondamental, et nous allons à présent examiner si les propriétés électroniques et optiques associées au degré de liberté de spin présentent une richesse et une complexité comparables à celles que nous avons mises à jour pour les effets de relaxation de population et de cohérence dans les parties précédentes, et qui sont spécifiques à ce système modèle à l'état solide.

I.5.1 Dédoublement des états brillants

I.5.1.1 Polarisation linéaire de l'émission des états brillants

Alors que le modèle de l'atome artificiel prédit une structure fine composée de deux états brillants dégénérés et couplés à des ondes polarisées circulairement droite et gauche, les résultats expérimentaux montrent au contraire que les états brillants sont dédoublés et qu'ils émettent de la lumière polarisée linéairement.

Une illustration de cet effet est donnée sur la figure I.5.1, qui montre la structure fine de la transition fondamentale par spectroscopie d'absorption sur une boîte quantique neutre InAs/GaAs pour différentes orientations de la polarisation linéaire du laser excitateur. Lorsque le champ électrique est orienté à 45° des axes (Ox) et (Oy), le spectre de la lumière transmise présente deux raies lorentziennes de 2.3 et 5 μeV de large, et distantes de 27 μeV . Lorsque la polarisation du laser est parallèle à (Ox) ou (Oy), une seule raie subsiste, ce qui montre que les deux états brillants sont couplés à des ondes électromagnétiques polarisées linéairement

suivant des directions orthogonales.

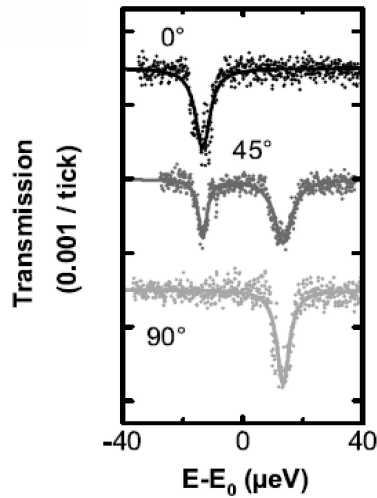


FIG. I.5.1 – Spectre d’absorption d’une boîte quantique neutre pour différentes orientations de la polarisation linéaire du laser excitateur, montrant les deux états brillants dédoublés et couplés à des polarisations linéaires orthogonales, d’après [82].

Si cette phénoménologie a été observée pour la première fois par Gammon *et al.* sur des boîtes quantiques GaAs/AlAs de défauts d’interface [85], des résultats comparables ont été obtenus pour des boîtes quantiques fabriquées à l’aide d’autres techniques et dans d’autres matériaux, et l’écart en énergie Δ_{XY} entre les deux états brillants varie entre quelques dizaines et quelques centaines de μeV [86, 87].

La levée de dégénérescence des états brillants et la modification de la polarisation de la lumière à laquelle ils sont couplés, proviennent de la brisure de symétrie de rotation autour de l’axe de croissance (Oz). Nous allons montrer que dans ce cas, la structure fine de l’état fondamental est déterminée par l’interaction coulombienne entre électron et trou ainsi que par le couplage interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$ entre les états électroniques.

I.5.1.2 Interaction d’échange électron-trou

L’interaction coulombienne entre deux états de paire électron-trou présente un terme direct et un terme d’échange. Ce résultat peut paraître surprenant dans la mesure où les termes d’échange sont fondamentalement associés à l’indiscernabilité des fermions, ou des bosons, qui forment les états -à au moins deux particules- impliqués dans une interaction [18]. Or les quasi-particules électron de conduction

et trou sont discernables puisque différentes, par leur charge, masse ou moment angulaire.

Cette contradiction apparente est levée en examinant en détail le problème de l'interaction coulombienne entre deux états de paire électron-trou $|e, h\rangle$ et $|e', h'\rangle$, ce qui correspond fondamentalement à l'interaction entre deux états à N électrons. En représentation \mathfrak{R}_{cv} , ces états s'écrivent $|c, v\rangle$ et $|c', v'\rangle$ et ils sont définis par $|c, v\rangle = a_c^+ a_v |\phi_0\rangle$ où a_μ et a_μ^+ sont les opérateurs de destruction et création d'un électron dans un état $|\mu\rangle$ avec $[a_\mu, a_\nu^+]_+ = \delta_{\mu, \nu}$, et $|\phi_0\rangle$ est l'état en l'absence d'excitation où aucun état de conduction n'est peuplé. L'élément de matrice de l'interaction coulombienne V_C entre ces deux états s'écrit [88] :

$$\langle c, v | V_C | c', v' \rangle = \delta_{v, v'} \delta_{c, c'} (\epsilon_c - \epsilon_v) - K_{v' c c' v} + I_{c v' c' v} \quad (\text{I.5.1})$$

où ϵ_c (ϵ_v) est un terme de renormalisation correspondant à l'énergie coulombienne d'un électron dans l'état c (respectivement v) interagissant avec les $N-1$ électrons dans les états de valence différents de v ; le terme coulombien direct $K_{v' c c' v}$ et le terme coulombien d'échange $I_{c v' c' v}$ sont donnés par :

$$K_{v' c c' v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \frac{\psi_{v'}^*(\vec{r}_1) \psi_c^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (\text{I.5.2})$$

$$I_{c v' c' v} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \frac{\psi_c^*(\vec{r}_1) \psi_{v'}^*(\vec{r}_2) \psi_{c'}(\vec{r}_2) \psi_v(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (\text{I.5.3})$$

où $\psi_\mu(\vec{r})$ est un spineur de dimension 2 qui caractérise fonction d'onde et spin de l'état μ . Ces éléments de matrice correspondent aux processus d'interaction direct et d'échange entre les paires (c', v) et (c, v') , tels que schématisés sur la figure (I.5.2). Finalement, un passage en représentation \mathfrak{R}_{eh} conduit à deux termes coulombiens direct et d'échange entre états de paire électron-trou, qui, d'un point de vue formel, s'écrivent comme si l'électron et le trou étaient des fermions indiscernables.

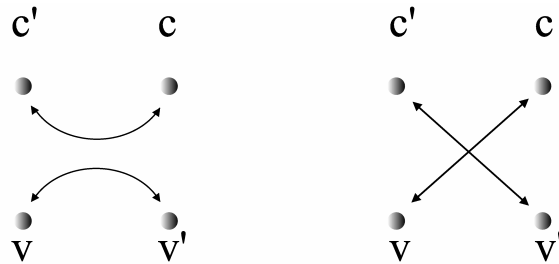


FIG. I.5.2 – Représentation des processus direct et d'échange entre les paires (c', v) et (c, v') , associés aux contributions directe $K_{v' c c' v}$ et d'échange $I_{c v' c' v}$ du couplage coulombien $\langle c, v | V_C | c', v' \rangle$.

Pikus et Bir ont développé un traitement général de l'interaction d'échange des excitons dans les semiconducteurs [89]. Nous n'entrerons pas dans les détails de cette théorie complexe, dans la mesure où le cadre théorique de notre étude de la structure fine dans une boîte quantique de semiconducteurs III-V correspond à un cas simple, où les états de paire électron-trou sont construits seulement à partir des états de conduction et des états lourds de valence. Comme nous l'avons vu page 10, ces états sont factorisables en leurs parties orbitales et de spin, et ce, même en présence d'un mélange entre états de conduction et de valence par le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, comme nous allons le considérer dans la partie suivante de ce mémoire. De fait, le potentiel coulombien V_C prend une forme particulièrement simple dans la base des quatre états $\{|\widetilde{-1}\rangle, |\widetilde{+1}\rangle, |\widetilde{-2}\rangle, |\widetilde{+2}\rangle\}$, où la notation $|\pm \widetilde{J}_z^{eh}\rangle$, définie page 18 dans la partie consacrée aux règles de sélection, ne retient que la valeur du moment cinétique total suivant (Oz) transféré au rayonnement.

D'après l'équation (I.5.2) qui est donnée *en représentation* \mathfrak{R}_{cv} , les règles de sélection pour le moment cinétique de spin suivant (Oz) annulent les termes non-diagonaux du couplage coulombien direct tandis que les termes diagonaux sont égaux [74]. Nous obtenons $K_{v'cc'v} = K_0 \delta_{v,v'} \delta_{c,c'}$, c'est-à-dire que l'effet des termes directs est de déplacer en bloc les quatre états, qui restent dégénérés.

Pour l'interaction d'échange, ces mêmes règles de sélection sur le spin nous indiquent que seule la restriction de V_C aux états brillants est non-nulle puisque c et v d'une part, et c' et v' d'autre part, doivent être dans le même état de spin (Fig. I.5.2), ce qui correspond aux états de paire électron-trou brillants. En conséquence, en représentation \mathfrak{R}_{eh} dans la base des états $\{|\widetilde{-1}\rangle, |\widetilde{+1}\rangle, |\widetilde{-2}\rangle, |\widetilde{+2}\rangle\}$, l'interaction d'échange s'écrit ² [91] :

$$\begin{pmatrix} \Delta_{NB} & I_0 & 0 & 0 \\ I_0^* & \Delta_{NB} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

où l'existence du terme diagonal Δ_{NB} indique la levée de dégénérescence entre les états noirs et brillants. Cette énergie est positive, ce qui place les états brillants à quelques centaines de μeV au-dessus des états noirs [90]. Le dédoublement des états brillants est caractérisé par une énergie Δ_{XY} , qui est égale à deux fois le

²Il est couramment mentionné dans la littérature un terme non-diagonal δ_2 pour les états noirs. Ce couplage d'échange entre états noirs provient des termes cubiques en $\Delta_2 \Sigma J_i^3 \sigma_i$ [29], qui apparaissent dans le hamiltonien de Pikus et Bir pour les semiconducteurs où *les états de valence lourds et légers sont dégénérés*, avec J et σ les moments cinétiques du trou et de l'électron [89]. L'écriture courante de ce hamiltonien pour des boîtes quantiques où la levée de dégénérescence entre trous lourds et légers est supposée grande (plusieurs dizaines de meV) est sujette à caution [90]. Par ailleurs, si V_C commute avec \vec{L} , $\Delta_2=0$ [89]. La levée de dégénérescence des états noirs provient alors d'une brisure de la symétrie de rotation de V_C via la constante diélectrique $\epsilon(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ à cause d'une anisotropie de l'écrantage à l'échelle de la cellule élémentaire.

module du terme I_0 de couplage par interaction d'échange entre les états $|\widetilde{-1}\rangle$ et $|\widetilde{+1}\rangle$ (Fig. I.5.3).

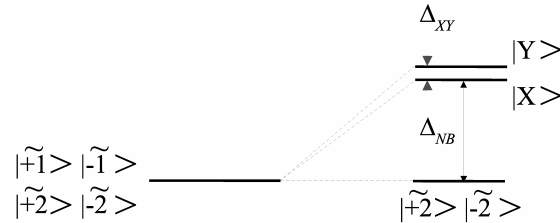


FIG. I.5.3 – Schéma de la structure fine de l'état fondamental montrant la levée de dégénérescence entre états noirs et brillants d'une part, et entre les deux états brillants d'autre part.

L'effet du potentiel coulombien V_C est en général analysé suivant son action à courte et longue portées. Cette séparation peut être effectuée dans l'espace réciproque à partir d'une décomposition de Fourier du potentiel coulombien [89]. Les composantes au voisinage du centre de zone définissent la partie dite "longue portée" de l'interaction coulombienne, qui, de fait, n'agit que sur la partie "enveloppe" des états électroniques. La dérivation analytique de la partie "courte portée" peut être réalisée dans l'espace direct par un développement des états électroniques sur une base de fonctions de Wannier [92]. Dans les éléments de matrice du potentiel coulombien à courte portée, les fonctions de Wannier des électrons sont localisées dans la même cellule élémentaire.

Dans la suite, nous n'entrerons pas dans le détail des expressions de ces deux types de terme ; nous retiendrons que dans l'élément de matrice $I_{cv'c'v}^{lp}$, le potentiel coulombien agit à longue portée sur les parties "enveloppes", alors que dans $I_{cv'c'v}^{cp}$ il agit à courte portée sur les parties atomiques.

I.5.1.3 Couplage interbande k.p

Dans le modèle de l'atome artificiel, l'invariance par rotation de la boîte quantique autour de l'axe de croissance (Oz) est une symétrie essentielle du système qui conditionne la structure des états électroniques et qui conduit à un état fondamental dégénéré quatre fois. Si l'interaction coulombienne apporte une faible correction à l'énergie des états de paire électron-trou qui est largement déterminée par le confinement quantique, elle est responsable de l'apparition d'une structure fine de la transition fondamentale via les termes d'échange. En particulier, elle lève la dégénérescence entre états noirs et brillants et, plus important, elle est susceptible de dédoubler les états brillants.

Pour examiner si la prise en considération de l'interaction d'échange apporte

une nouvelle limitation essentielle au modèle de l'atome artificiel, il faut déterminer si l'énergie Δ_{XY} est non-nulle et si elle dépendent de la symétrie de la boîte quantique. Cependant, avant d'aborder ce point, il est nécessaire d'introduire le terme de couplage interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$, terme absent du modèle de l'atome artificiel où l'aspect cristallin du problème est en grande partie négligé.

Par un traitement en perturbation au premier ordre du couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, il est possible de déterminer les fonctions atomiques des états électroniques au voisinage du centre de zone. Dans notre cas, il s'agit de diagonaliser le hamiltonien $\vec{k} \cdot \vec{p}$ dans la base des états de conduction et des états de valence lourds $\{|u_1\rangle, |u_2\rangle, |u_5\rangle, |u_6\rangle\}$. Comme $|u_1\rangle$ et $|u_5\rangle$ sont des états de spin \uparrow et $|u_2\rangle$ et $|u_6\rangle$ des états de spin \downarrow , nous obtenons :

$$|u_{c,\vec{k}}\rangle = |u_c\rangle - \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k} \cdot \langle u_v | \vec{p} | u_c \rangle}{\epsilon_g} |u_v\rangle \quad (\text{I.5.4})$$

$$|u_{v,\vec{k}}\rangle = |u_v\rangle + \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k} \cdot \langle u_c | \vec{p} | u_v \rangle}{\epsilon_g} |u_c\rangle \quad (\text{I.5.5})$$

avec $(c,v)=(1,5)$ ou $(2,6)$, et ϵ_g l'énergie de bande interdite. Le mélange des états atomiques de centre zone a pour conséquence que les états $|u_{i,\vec{k}}\rangle$ ne sont plus des états propres de J^2 et J_z . Le moment cinétique total de l'état atomique n'est plus un bon nombre quantique en $\vec{k} \neq \vec{0}$, effet bien connu en physique des semiconducteurs massifs et des puits quantiques.

Dans le cas des boîtes quantiques, les répercussions de ce mélange de "bandes" sont importantes puisque les électrons sont confinés dans les trois directions de l'espace et que leurs fonctions d'onde sont des paquets d'états de Bloch. Pour les états électroniques complets, nous obtenons en première approximation [14] :

$$|\psi_c\rangle = |\chi_c\rangle |u_c\rangle + \frac{\langle u_v | \vec{p} | u_c \rangle}{m_0 \epsilon_g} \cdot (\vec{p} | \chi_c \rangle) |u_v\rangle \quad (\text{I.5.6})$$

$$|\psi_v\rangle = |\chi_v\rangle |u_v\rangle - \frac{\langle u_c | \vec{p} | u_v \rangle}{m_0 \epsilon_g} \cdot (\vec{p} | \chi_v \rangle) |u_c\rangle \quad (\text{I.5.7})$$

où $\chi_i(\vec{r})$ est la fonction "enveloppe" déterminée dans l'approximation de la masse effective pour l'état i . Nous constatons que dans le terme correctif introduit par le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, la partie lentement variable est déterminée par la dérivée de la fonction "enveloppe" de l'état correspondant.

Quelles sont les conséquences de cette modification des états de conduction et de valence sur les règles de sélection, et plus particulièrement sur la polarisation de l'onde électromagnétique absorbée ou émise par une boîte quantique au niveau de l'état fondamental. Les transitions $|\psi_5\rangle \rightarrow |\psi_2\rangle$ et $|\psi_6\rangle \rightarrow |\psi_1\rangle$ restent interdites par orthogonalité des états de spin. Les transitions $|\psi_5\rangle \rightarrow |\psi_1\rangle$ et $|\psi_6\rangle \rightarrow |\psi_2\rangle$ sont autorisées et elles sont a priori associées à des polarisations elliptiques (ζ^-)

et (ζ^+), dont les composantes majoritaires sont respectivement les polarisations circulaires (σ^-) et (σ^+). Ces états de polarisation elliptique ne diffèrent que par leur sens de rotation et leur ellipticité est directement reliée à l'anisotropie de la boîte quantique, que nous discuterons ultérieurement dans la partie consacrée à l'anisotropie des forces d'oscillateurs. Si nous passons en représentation \mathfrak{R}_{eh} , les états de paire électron-trou couplés à la lumière ne sont plus des états propres de J^2 et J_z . Quand bien même J_z n'est plus un bon nombre quantique pour ces états de paire électron-trou, nous garderons les mêmes notations que précédemment où $|-1\rangle$ et $|+1\rangle$ désignent les états brillants émettant respectivement de la lumière polarisée elliptiquement (ζ^-) et (ζ^+).

Examinons à présent l'influence respective de l'interaction d'échange et du couplage interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$ sur l'apparition d'une structure fine, et ce en fonction de la symétrie de la boîte quantique.

I.5.1.4 Symétrie d'une boîte quantique

- *Invariance par rotation autour de l'axe (Oz) (symétrie $C_{\infty v}$)*

Dans le cas où la boîte quantique est invariante par rotation autour de l'axe de croissance (Oz), les états "enveloppes" $|\chi_c\rangle$ et $|\chi_v\rangle$ sont états propres de L_z , pour la valeur propre 0 dans le cas de l'état fondamental. En revanche, les parties "enveloppes" des termes correctifs dans les équations (I.5.6)&(I.5.7) sont états propres de L_z pour les valeurs propres ± 1 car l'élément de matrice atomique $\langle u_v | \vec{p} | u_c \rangle$ est de la forme $P_0(\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y)$.

Le terme d'échange courte portée, qui agit sur les états atomiques, apporte une contribution nulle. En effet, sans le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$ tout d'abord, nous retrouvons des états de paire électron-trou dont les parties atomiques sont vecteurs propres de J_z pour des valeurs propres différentes et comme le potentiel coulombien commute avec J_z , l'énergie Δ_{XY} est nulle. Avec le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, tous les termes supplémentaires s'annulent par orthogonalité des états "enveloppes".

Le terme d'échange à longue portée, qui agit sur les états "enveloppes", est également nul. En effet, sans le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, l'orthogonalité des états atomiques conduit à $\Delta_{XY}=0$. Avec le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$, tous les termes supplémentaires sont nuls, soit par orthogonalité des états atomiques, soit parce que couplant des états "enveloppes" de L_z différents.

- *Brisure de l'invariance par rotation autour de l'axe (Oz)*

La brisure de l'invariance par rotation peut provenir d'une élongation de la boîte quantique [93, 94], d'une anisotropie de composition [95] ou d'une anisotropie des contraintes [96]. En général, les axes principaux d'une boîte quantique anisotrope correspondent aux directions cristallographiques [110] et $[1\bar{1}0]$. Lorsque le potentiel de confinement n'a plus la symétrie de rotation, aucun état "enveloppe" dans les équations (I.5.6)&(I.5.7) n'est état propre de L_z .

Le terme d'échange à courte portée reste nul pour les mêmes raisons que précédemment. D'un point de vue plus général, l'interaction d'échange à courte portée est sensible aux brisures de symétrie à l'échelle de la cellule élémentaire, et pas aux modifications du potentiel de confinement de la boîte quantique.

En revanche, le terme d'échange à longue portée devient non nul. Dans ce cas, le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$ est absolument nécessaire puisque si les termes correctifs des équations (I.5.6)&(I.5.7) sont négligés, les états électroniques restent factorisables en une partie "enveloppe" -déformée- et une partie atomique, de sorte que l'orthogonalité des états atomiques conduit là-encore à une énergie $\Delta_{XY}=0$. Le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$ rend l'état électronique à une particule non factorisable avec deux états "enveloppes" différents pour lesquels L_z n'est plus un bon nombre quantique. Finalement, le couplage coulombien d'échange à longue portée entre les états $|\widetilde{-1}\rangle$ et $|\widetilde{+1}\rangle$ s'écrit [17] :

$$I_0 \sim \left(\frac{\hbar}{m_0 \epsilon_g} \right)^2 \int d\vec{q} \frac{P_0^2}{2} (q_x + iq_y)^2 V_q \left| \int d\vec{r} \chi_v^*(\vec{r}) \chi_c(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (\text{I.5.8})$$

On retrouve sur cette expression que si le potentiel de confinement est invariant par rotation, les fonctions "enveloppes" $\chi_i(\vec{r})$ sont de symétrie S , la transformée de Fourier de leur produit ne dépend alors que de la norme de \vec{q} , et en coordonnées cylindriques, l'intégration sur θ annule I_0 .

En résumé, dans une boîte quantique de symétrie réduite, l'interaction coulombienne d'échange peut, grâce au hamiltonien $\vec{k} \cdot \vec{p}$, coupler les états brillants $|\widetilde{-1}\rangle$ et $|\widetilde{+1}\rangle$. Les nouveaux états propres sont des combinaisons linéaires du type :

$$|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{+i\theta_0} |\widetilde{-1}\rangle + e^{-i\theta_0} |\widetilde{+1}\rangle) \quad (\text{I.5.9})$$

$$|Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{+i\theta_0} |\widetilde{-1}\rangle - e^{-i\theta_0} |\widetilde{+1}\rangle) \quad (\text{I.5.10})$$

où $2\theta_0$ est l'argument du terme de couplage I_0 (cf. page 73). Ces états, distants d'une énergie Δ_{XY} égale à $2|I_0|$, sont couplés à des ondes polarisées linéairement suivant des directions qui correspondent aux axes principaux de la boîte quantique de symétrie réduite. Par exemple, pour une boîte quantique anisotrope dont le potentiel de confinement est de symétrie elliptique, les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont couplés à des polarisations linéaires orthogonales dont les directions coïncident avec les petit et grand axes de la boîte quantique de forme elliptique. Dans la référence [17], le couplage d'échange entre états brillants est étudié dans le cadre d'un modèle basé sur une boîte quantique de base elliptique et sont discutées les variations de Δ_{XY} en fonction de la taille de la boîte quantique, son ellipticité ou la présence d'un champ électrique dans le plan. Les valeurs calculées sont de l'ordre de quelques dizaines de μeV en bon accord avec les résultats expérimentaux dans la littérature.

Finalement, la brisure de la symétrie de rotation autour de l'axe de croissance (Oz) conduit par l'action conjointe des couplages coulombien et interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$ à l'apparition d'une structure fine de l'état fondamental où les états brillants dédoublés et distants de quelques dizaines de μeV sont situés à quelques centaines de μeV au-dessus des états noirs (Fig. I.5.3). C'est la situation qui est rencontrée systématiquement dans la littérature sur les boîtes quantiques et dans une boîte quantique neutre, l'observation de deux états brillants dégénérés n'a, à notre connaissance, jamais été reportée. De ce point de vue, il semble que l'écart aux prédictions du modèle de l'atome artificiel ne soit pas tant due au problème de la non-inclusion de l'interaction d'échange et du couplage interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$, qu'à la maîtrise de la géométrie des boîtes quantiques lors de leur croissance. En effet, dans une boîte quantique invariante par rotation autour de l'axe de croissance, la dégénérescence des états noirs et brillants est certes levée mais les états brillants ne sont pas dédoublés, c'est cette caractéristique du modèle de l'atome artificiel qui est recherchée dans les applications en cryptographie quantique.

En fait, quand bien même le potentiel de confinement de la boîte quantique est de symétrie $C_{\infty v}$, les états brillants sont dédoublés à cause de la symétrie C_{2v} de la structure blende de zinc du cristal, ce qui détermine la symétrie de rotation de la boîte quantique.

- *Symétrie de rotation C_{2v} du cristal*

L'influence de la symétrie du cristal à l'échelle atomique sur la symétrie du potentiel de confinement a en particulier été étudiée par le groupe de A. Zunger [91]. Les effets consistent essentiellement en (i) une asymétrie des interfaces entre les matériaux InAs et GaAs, (ii) un déplacement des atomes de Ga et In de masses différentes, déplacement qui vient renforcer l'asymétrie de l'interface, et (iii) l'apparition d'un champ piézo-électrique à longue portée en réponse au champ de déplacement. Dans les calculs des états électroniques dans l'approximation de la masse effective ou par la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$, ces effets ne sont pas pris en considération alors qu'ils sont intrinsèquement inclus dans les calculs par la méthode des liaisons fortes ou l'approche empirique des pseudo-potentiels [97].

La conséquence directe est la levée de dégénérescence des états brillants, dont le splitting Δ_{XY} est de l'ordre d'une dizaine de μeV , valeur comparable à celles calculées dans le cadre d'une élongation de la boîte quantique suivant un axe cristallographique. Ce dédoublement des états brillants dans une boîte quantique de forme parfaitement symétrique peut être interprété comme résultant de l'existence d'un potentiel supplémentaire agissant sur les porteurs, lequel n'est pas à symétrie de révolution et, une fois ajouté au potentiel de confinement, engendre un potentiel total anisotrope pour les électrons et les trous.

En définitive, nous constatons qu'une maîtrise parfaite des techniques de croissance aboutissant à une symétrie cylindrique de la forme des boîtes quantiques ne permet pas d'assurer la dégénérescence des états brillants. La brisure de sy-

métrie du potentiel de confinement total à des échelles micro- ou méso-scopiques conduit au dédoublement des états brillants par le biais de l'action conjointe de l'interaction coulombienne indirecte et du couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$. Cet effet constitue une nouvelle limitation au modèle de l'atome artificiel, qui explique les difficultés rencontrées actuellement par l'ensemble des équipes cherchant à travailler avec des boîtes quantiques "symétriques", en particulier pour la réalisation à l'état solide de sources de photons intriqués. Par conséquent, la dégénérescence des états brillants ne peut être obtenue qu'accidentellement dans des boîtes quantiques où la déformation géométrique compense l'asymétrie cristalline, ou qu'artificiellement à l'aide d'un champ électrique dans le plan, ou à l'aide de l'effet Purcell pour avoir une largeur naturelle supérieure au splitting Δ_{XY} .

Si le dédoublement des états brillants est une signature de la brisure de symétrie de la boîte quantique, il existe un autre aspect de la structure fine de l'état fondamental qui est beaucoup moins étudié dans la littérature sur les boîtes quantiques, il s'agit de la différence de forces d'oscillateurs des deux états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$.

I.5.2 Anisotropie de polarisation linéaire

La vaste littérature sur les boîtes quantiques InAs/GaAs comporte un certain nombre de travaux sur l'anisotropie de la polarisation linéaire du signal de photoluminescence. Par spectroscopie de photoluminescence sur des ensembles de boîtes quantiques, de faibles anisotropies, de l'ordre de 10%, sont mesurées pour des échantillons contenant des boîtes quantiques InAs déposées sur un substrat de GaAs orienté (001) [98, 99]. Des anisotropies de plusieurs dizaines de pourcents ont été observées, mais dans des structures plus compliquées telles que des boîtes quantiques empilées verticalement [99] ou déposées sur des substrats désorientés [100].

Sur des échantillons standards avec un seul plan de boîtes quantiques InAs/GaAs sur un substrat orienté (001), nous avons mené, dans le cadre de la thèse d'I. Favero, une étude systématique de l'anisotropie de polarisation linéaire du signal de photoluminescence à l'échelle de la boîte quantique unique. Notre étude a entre autre révélé l'existence de très fortes anisotropies, i.e. la signature d'une structure fine beaucoup plus complexe que celle décrite dans la littérature.

I.5.2.1 Anisotropie de polarisation et densité surfacique de boîtes quantiques

Les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ émettent de la lumière polarisée linéairement suivant des axes orthogonaux et nous caractérisons le signal de photoluminescence

d'une boîte quantique unique par le taux de polarisation linéaire R_L égal à :

$$R_L = \frac{I_{|X\rangle} - I_{|Y\rangle}}{I_{|X\rangle} + I_{|Y\rangle}} \quad (\text{I.5.11})$$

où $I_{|X\rangle}$ et $I_{|Y\rangle}$ représentent respectivement les intensités de photoluminescence des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, qui du point de vue expérimental sont mesurées, sous excitation non-résonante dans la barrière, en intégrant spectralement le signal de photoluminescence analysé suivant les axes (Ox) et (Oy). Nous n'avons pas toujours pu résoudre le dédoublement des états brillants, en particulier lorsque le rapport $I_{|X\rangle}:I_{|Y\rangle}$ est très différent de 1. Lorsque le splitting Δ_{XY} est mesurable, nous avons trouvé des valeurs comprises entre 10 et 160 μeV [74]. D'autre part, nous avons systématiquement observé que les extrema de l'intensité du signal de photoluminescence sont obtenus lorsque la direction d'analyse correspond aux directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$, conformément à l'orientation attendue pour les axes principaux d'une boîte quantique anisotrope [93, 94, 95]. Enfin, toutes nos mesures de R_L par micro-photoluminescence ont été effectuées pour des boîtes quantiques situées dans des mesas. Nous avons attentivement examiné, et écarté, l'influence possible de la lithogravure sur la mesure du taux de polarisation linéaire [74].

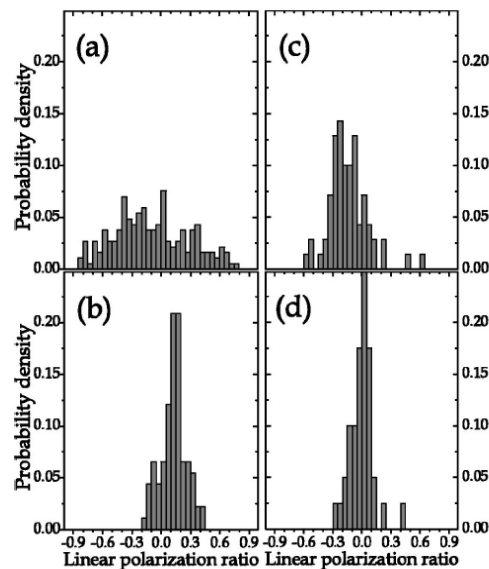


FIG. I.5.4 – Etude statistique du taux de polarisation linéaire R_L du signal de photoluminescence, sur quatre cents boîtes quantiques provenant de quatre échantillons, à faible (a)&(c) et forte (b)&(d) densité surfacique de boîtes quantiques, d'après [102].

L'originalité de nos travaux sur l'anisotropie de polarisation linéaire est double. D'une part, nous avons mesuré le taux de polarisation linéaire R_L à

l'échelle de la boîte quantique unique et une étude systématique sur quatre cents boîtes quantiques provenant de quatre échantillons différents nous a permis de déterminer la distribution statistique du taux de polarisation linéaire [101], alors que les expériences sur des ensembles de boîtes quantiques ne donnent accès qu'à la valeur moyenne de R_L . D'autre part, nous avons examiné l'influence de la densité surfacique de boîtes quantiques sur la densité de probabilité du taux de polarisation linéaire. Pour ce faire, nous avons étudié des zones dites "diluée" et "dense", localisées en des points différents d'une galette épitaxiée. En effet, il est possible de créer un gradient quasi-linéaire de l'épaisseur du matériau InAs déposé lors de la croissance d'un échantillon de boîtes quantiques en régime Stranski-Krastanow. En-dessous de l'épaisseur critique de nucléation spontanée des boîtes quantiques (1.7 monocouches atomiques pour InAs/GaAs), la croissance de la couche d'InAs est quasi-bidimensionnelle et la densité de boîtes quantiques est nulle. Au-dessus de l'épaisseur critique, l'auto-organisation des boîtes quantiques est pleinement développée : il s'agit de la zone "dense" où la croissance est quasi-tridimensionnelle et la densité surfacique de boîtes quantiques est de l'ordre de 10^{11}cm^{-2} . Enfin, au voisinage de l'épaisseur critique, il existe une zone "frontière" où la couche d'InAs est partiellement entrée dans le régime de relaxation des contraintes par nucléation d'îlots : le réseau de boîtes quantiques est très dilué et il est possible d'atteindre des densités surfaciques $\lesssim 10^8\text{cm}^{-2}$. Afin d'identifier l'influence de la densité de boîtes quantiques, nous avons travaillé sur deux couples d'échantillons en zones "diluée" et "dense". Une paire vient du CNET-Bagneux (J. M. Gérard) , et l'autre provient de l'Université de Californie-Santa Barbara (P. M. Petroff) et dans ce dernier cas les deux échantillons sont issus de la même galette.

Les résultats obtenus sur ces quatre échantillons sont présentés sur la figure I.5.4 où les échantillons du CNET-Bagneux sont à gauche, ceux de UCSB à droite ; les résultats en zone diluée sont en haut (Fig. I.5.4(a)&(c)) et ceux en zone dense en bas (Fig. I.5.4(b)&(d)). Les valeurs de la moyenne $\langle R_L \rangle$ et de l'écart quadratique moyen σ_{R_L} du taux de polarisation linéaire sont résumées dans le tableau ci-dessous.

Fig. I.5.4	$\langle R_L \rangle$	σ_{R_L}	Zone	Origine
(a)	-0.09	0.38	diluée	CNET
(b)	+0.12	0.12	dense	CNET
(c)	-0.15	0.20	diluée	UCSB
(d)	-0.007	0.11	dense	UCSB

Les petites valeurs de $\langle R_L \rangle$ montrent que les *ensembles* de boîtes quantiques sont faiblement anisotropes. Etant donné qu'aucune corrélation n'est observée entre l'énergie de l'état fondamental et la valeur de R_L , nous retrouvons ces valeurs de $\langle R_L \rangle$ lorsque nous mesurons le taux de polarisation linéaire dans de grandes mesas, sur des ensembles de boîtes quantiques. Par ailleurs, nos

mesures de $\langle R_L \rangle$ sont comparables aux résultats de la littérature obtenus par spectroscopie de photoluminescence sur des ensembles de boîtes quantiques [98, 99] et à partir desquels il est déduit que l'anisotropie de polarisation linéaire du signal de photoluminescence est faible ($\lesssim 10\%$) pour de simples boîtes quantiques InAs/GaAs épitaxiées sur des substrats de GaAs orientés (001).

Notre étude à l'échelle de la boîte quantique unique nous donne accès à la loi de probabilité de R_L , et non plus seulement à la valeur moyenne $\langle R_L \rangle$, et elle révèle l'existence d'anisotropies de polarisation géantes ($R_L \sim \pm 85\%$) ainsi que de grandes disparités en fonction de la densité surfacique de boîtes quantiques.

Pour l'échantillon en zone diluée de la figure I.5.4(a), nous constatons que le taux de polarisation linéaire fluctue en signe et en amplitude, avec des valeurs extrêmes considérablement élevées : un taux de polarisation linéaire de $\pm 85\%$ correspond en effet à des boîtes quantiques où l'intensité du signal de photoluminescence augmente d'un facteur dix lorsque la direction de l'axe d'analyse est tournée de $\pi/2$. Ces valeurs sont sans commune mesure avec les résultats publiés antérieurement sur des boîtes quantiques InAs/GaAs.

La situation est radicalement différente sur l'échantillon en zone dense fabriqué dans le même laboratoire (Fig. I.5.4(b)). La dispersion des valeurs du taux de polarisation linéaire est faible ($\sigma_{R_L} \sim 12\%$ contre 38% en zone diluée). Il n'y a plus de boîte quantique dont la polarisation linéaire du signal de photoluminescence est extrêmement anisotrope.

Cette corrélation entre anisotropie de polarisation linéaire et densité surfacique de boîtes quantiques est observée sur les deux échantillons provenant de UCSB (Fig. I.5.4(c)&(d)). L'élargissement de la distribution statistique de R_L est quantitativement moins élevé puisque σ_{R_L} augmente seulement d'un facteur deux entre zones dense et diluée. Néanmoins, il est important de noter qu'il s'agit dans ce cas de deux échantillons provenant de la même galette épitaxiée, ce qui nous permet d'exclure un effet lié à la modification des conditions de croissance entre deux galettes.

Enfin, nous n'avons pas observé de corrélation entre les valeurs de R_L et Δ_{XY} , ce qui indique que la phénoménologie de la brisure de symétrie d'une boîte quantique n'est pas uniquement caractérisée par la valeur du splitting entre les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, et que le taux de polarisation linéaire de la photoluminescence révèle une autre facette de l'anisotropie d'une boîte quantique.

En résumé, nous avons mis en évidence un effet d'anisotropie géante de la polarisation linéaire du signal de photoluminescence sur boîte quantique unique. Cet effet se produit spécifiquement lorsque la densité surfacique de boîtes quantiques est faible. Dans les échantillons en zone dense, la dispersion du taux de polarisation linéaire est faible, de l'ordre de 10% .

La présence d'une anisotropie de polarisation linéaire au niveau de la réponse optique de l'état fondamental nécessite l'existence de forces d'oscillateurs diffé-

rentes pour les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. A la lumière de notre discussion des effets conjoints de l'interaction d'échange et du couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$ dans le dédoublement des états brillants, nous examinons à présent si la brisure de symétrie d'une boîte quantique conduit à une différence de leurs forces d'oscillateurs.

I.5.2.2 Forces d'oscillateurs des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$

Le calcul des forces d'oscillateurs des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ requiert l'évaluation des éléments de matrice de l'interaction dipolaire $|\langle \phi_0 | \vec{e}_x \cdot \vec{p} | X \rangle|^2$ et $|\langle \phi_0 | \vec{e}_y \cdot \vec{p} | Y \rangle|^2$. En utilisant le fait que $|\widetilde{+1}\rangle \sim 1/\sqrt{2}(|X\rangle - |Y\rangle)$, nous nous ramenons au problème équivalent de la détermination de $\langle \phi_0 | \vec{e}_x \cdot \vec{p} | \widetilde{+1} \rangle$ et $\langle \phi_0 | \vec{e}_y \cdot \vec{p} | \widetilde{+1} \rangle$. Après un passage en représentation \mathfrak{R}_{cv} et la prise en considération du couplage interbande $\vec{k} \cdot \vec{p}$ à l'aide des équations (I.5.6)&(I.5.7), nous obtenons [17] :

$$\langle \psi_v | \vec{e}_x \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle = \frac{P_0}{\sqrt{2}} \left(\langle \chi_v | \chi_c \rangle + \frac{\hbar^2 P_0^2}{2m_0^2 \epsilon_g^2} \left[\left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (\text{I.5.12})$$

et

$$\langle \psi_v | \vec{e}_y \cdot \vec{p} | \psi_c \rangle = \frac{iP_0}{\sqrt{2}} \left(\langle \chi_v | \chi_c \rangle - \frac{\hbar^2 P_0^2}{2m_0^2 \epsilon_g^2} \left[\left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (\text{I.5.13})$$

où nous constatons que la différence de forces d'oscillateurs provient des termes correctifs dus au couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$. Il est important de noter que c'est précisément le mélange de "bandes" par le hamiltonien $\vec{k} \cdot \vec{p}$ qui permet de transmettre les effets de brisure de symétrie du potentiel de confinement au niveau de la valeur moyenne du dipole dans le cas de transitions interbandes. Dans le cas de transitions intrabandes ou dans le cas de molécules anisotropes, la déformation du système conduit directement à une anisotropie de la réponse optique.

D'autre part, nous remarquons que l'interaction coulombienne d'échange ne joue aucun rôle dans l'assymétrisation des forces d'oscillateurs. En particulier, dans le cas d'une boîte quantique chargée où les états brillants sont dégénérés [81], la brisure de symétrie d'une boîte quantique se traduit par des moments dipolaires différents suivant les axes (Ox) et (Oy).

Finalement, l'anisotropie η_{XY} des forces d'oscillateurs $f_{|X\rangle}$ et $f_{|Y\rangle}$ des états brillants est donnée par :

$$\eta_{XY} = \frac{f_{|X\rangle} - f_{|Y\rangle}}{f_{|X\rangle} + f_{|Y\rangle}} \sim \frac{\hbar^2 P_0^2}{m_0^2 \epsilon_g^2} \text{Re} \left[\frac{\left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \chi_v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \chi_c}{\partial x} \right\rangle}{\langle \chi_v | \chi_c \rangle} \right] \quad (\text{I.5.14})$$

où nous retrouvons la nécessité d'avoir des états "enveloppes" qui ne sont plus des états propres de L_z . Les fonctions "enveloppes" doivent être déformées par

l'anisotropie du potentiel du confinement pour induire une différence entre les forces d'oscillateurs $f_{|X\rangle}$ et $f_{|Y\rangle}$.

Dans la référence [17], l'anisotropie des forces d'oscillateurs est calculée dans le cadre d'un modèle basé sur une élongation de la boîte quantique. Les variations de η_{XY} sont étudiées en fonction de la taille de la boîte quantique, son ellipticité ou la présence d'un champ électrique dans le plan. Pour un rayon moyen de 10 nm, η_{XY} est voisin de 4% pour une ellipticité de 1 [17] et l'anisotropie atteint une dizaine de pourcents pour un rapport d'aspect de l'ordre de 3 suivant les deux directions (Ox) et (Oy). Si nous comparons ces calculs aux données expérimentales des échantillons en zone dense (Fig. I.5.4(b)&(d)), nous obtenons un bon accord. La faible dispersion des valeurs de R_L , qui est de l'ordre de 10%, est compatible avec une variation de l'élongation des boîtes quantiques dans les ensembles en zone dense. En revanche, les anisotropies géantes mesurées sur les échantillons en zone diluée (Fig. I.5.4(a)&(c)) ne sont absolument pas expliquées par ce modèle. Les valeurs considérablement élevées de R_L de l'ordre de $\pm 85\%$ ne peuvent pas être expliquées par une élongation très prononcée de la boîte quantique, que les calculs soient effectués dans l'approximation de la masse effective [17] ou dans le modèle des pseudo-potentiels [97]. Il semble qu'un ingrédient manque à notre modèle pour pouvoir rendre compte des résultats obtenus en zone diluée.

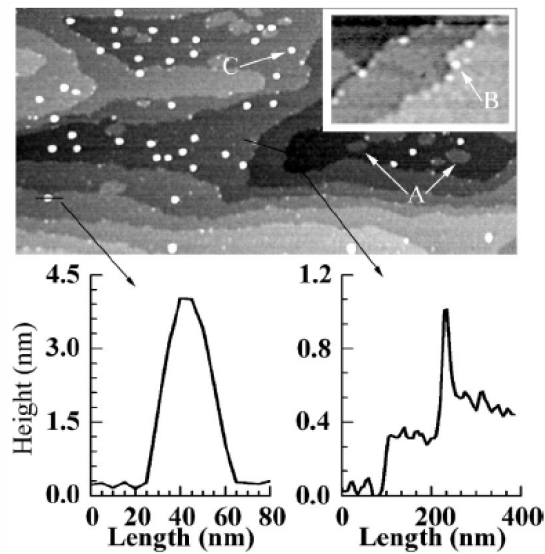


FIG. I.5.5 – Topographie AFM en zone diluée ($2 \times 1 \mu\text{m}^2$) montrant les sites de nucléation des boîtes quantiques. La coupe en bas à droite et l'encart montrent que le bord des couches mono-atomiques est un site préférentiel de nucléation, d'après [97].

Un élément de réponse est fourni par des études structurales de boîtes quantiques InAs/GaAs en zone diluée [96]. Par microscopie de force atomique

à haute résolution, Patella *et al.* mettent en évidence qu'au seuil de nucléation des boîtes quantiques lors de la transition entre des croissances bi- et tri-dimensionnelles, des îlots se forment préférentiellement exactement au bord des couches d'épaisseur mono-atomique (Fig. I.5.5). Comme la formation spontanée des boîtes quantiques est précisément basée sur une relaxation locale de la contrainte, il est possible qu'existe un lien étroit entre les champs de contrainte dans la boîte quantique et dans le bord des marches mono-atomiques et que ces champs soient non-homogènes et anisotropes.

L'inclusion dans notre modèle de l'état de contrainte complexe des boîtes quantiques en zone diluée est susceptible de modifier le mélange entre états de valence lourd et léger. Dans tout ce mémoire, nous n'avons pas évoqué les effets liés à la contrainte et aux trous légers, et il existe un lien fort entre ces deux aspects. En effet, il est courant de négliger l'influence des trous légers, supposés être séparés de plusieurs dizaines de meV des trous lourds. Si tel est le cas, c'est en raison d'une compétition entre confinement et contrainte. Dans un puits quantique, les trous légers ont une masse suivant (Oz) plus faible que les trous lourds, le confinement lève leur dégénérescence et les excitons de plus basse énergie sont formés avec des états lourds. En revanche, la masse dans le plan est plus faible pour les trous lourds de sorte qu'un confinement latéral supplémentaire contribue à diminuer l'écart en énergie entre trous lourd et léger. Dans ce problème, la contrainte est un paramètre supplémentaire qui joue un rôle essentiel dans la séparation en énergie entre trous lourd et léger. S'il est commode de négliger l'influence des trous légers pour modéliser de manière simple les boîtes quantiques, il ne faut cependant pas perdre de vue que l'état de contrainte dans la boîte quantique est un problème sous-jacent, qui est susceptible de réapparaître si les champs de contrainte sont non-homogènes ou anisotropes. Si la phénoménologie des fils quantiques s'applique aux boîtes quantiques, un mélange lourd-léger important dans les boîtes quantiques en zone diluée va renforcer l'anisotropie de polarisation linéaire [102, 103].

En résumé, nous avons montré que le signal de photoluminescence d'une boîte quantique unique présente une anisotropie de polarisation linéaire dont la magnitude dépend de la densité surfacique de boîtes quantiques. Dans des ensembles denses de boîtes quantiques, le taux de polarisation linéaire a une faible dispersion, de l'ordre de 10%, en bon accord avec l'anisotropie des forces d'oscillateur des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ attendue pour une boîte quantique de symétrie réduite. En revanche, dans des ensembles dilués de boîtes quantiques, l'anisotropie de polarisation peut être géante avec des valeurs de R_L atteignant $\pm 85\%$. Dans un modèle où les états de paire électron-trou sont construits seulement avec des trous lourds, ces valeurs ne sont absolument pas expliquées par une anisotropie des forces d'oscillateurs due à une élongation prononcée de la boîte quantique. La mise en évidence d'une anisotropie structurale des boîtes quantiques en zone diluée montre l'importance d'inclure leur champ de contrainte complexe dans notre

modèle et le mélange entre trous lourd-léger qui peut en résulter est susceptible d'expliquer l'anisotropie de polarisation géante. Nous terminerons sur ce point en mentionnant les études très récentes qui viennent d'être réalisées à l'Université de Sheffield dans le groupe de M. Skolnick par magnéto-microphotoluminescence sur des boîtes quantiques en zone diluée (où des taux de polarisation de plus de 90% sont mesurés). Ces travaux montrent une corrélation entre la magnitude du taux de polarisation linéaire et la réduction du facteur de Landé lors du passage de la configuration Faraday à la configuration Voigt, un effet associé au mélange entre trous lourd et léger [104].

I.5.3 Conclusion

La structure fine de l'état fondamental d'une boîte quantique est caractérisée par un dédoublement des états brillants et une anisotropie de polarisation linéaire. Ces deux aspects sont absents du modèle de l'atome artificiel, qui néglige un certain nombre d'effets assez subtils, mais bien connus en physique des semiconducteurs, comme l'interaction coulombienne d'échange et le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$. En ce qui concerne l'anisotropie de polarisation linéaire, nous avons mis en évidence l'influence inattendue de la densité surfacique de boîtes quantiques, i.e. une variante supplémentaire de l'influence de la matrice environnante sur les propriétés électroniques et optiques d'une boîte quantique, dans la mesure où l'anisotropie structurale d'une boîte quantique se révèle être déterminée par des paramètres extrinsèques.

De manière générale, ces limitations au modèle de l'atome artificiel proviennent fondamentalement du fait que le moment cinétique total n'est plus un bon nombre quantique à cause du mélange des états atomiques par le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$. L'équivalence stricte entre état de polarisation de la lumière émise et moment cinétique de l'état de paire électron-trou disparaît, le moment angulaire transféré au photon ne reflète que partiellement le moment angulaire des composantes de l'état de paire électron-trou. Pour les applications dans le domaine de la spintronique, la conversion à l'aide de boîtes quantiques d'un courant polarisé de spin en une onde électromagnétique polarisée circulairement a montré des résultats décevants avec une efficacité de l'ordre du pourcent [105]. Si une étude théorique a mis en lumière que cette conversion est délicate même avec des boîtes quantiques supposées symétriques [106], il est probable que l'anisotropie des boîtes quantiques soit un facteur déterminant dans la perte de mémoire de l'orientation du spin des porteurs injectés.

L'anisotropie de polarisation linéaire du signal de photoluminescence fait cependant apparaître des perspectives intéressantes pour l'émission de lumière polarisée. Pour la génération de photons uniques, des boîtes quantiques anisotropes en zone diluée apportent une solution simple. Lors de leur insertion dans des nanocavités pour augmenter l'extraction de la lumière [84], l'adaptation à la polarisation

du mode de cavité peut être optimisée grâce à la connaissance de l'orientation de la polarisation linéaire suivant les axes cristallographiques. A une échelle macroscopique, l'anisotropie de la réponse optique sur un ensemble de boîtes quantiques est un moyen d'agir sur la polarisation de la lumière émise dans des lasers à cavité verticale (VCSELs). En effet, dans des lasers avec émission par la tranche, la polarisation linéaire de l'émission est soit parallèle, soit orthogonale au plan des couches, et elle est déterminée par les propriétés du guide d'onde ainsi que par la nature des transitions inter ou intra-bandes. Dans les lasers à cavité verticale où l'émission se propage perpendiculairement au plan des couches actives, la polarisation de l'émission n'est pas d'emblée définie par la géométrie du système. Elle est fixée par une compétition entre les propriétés anisotropes linéaires de la cavité (biréfringence, géométrie du guide) et la dynamique non-linéaire du milieu actif. La polarisation de l'émission résulte d'une instabilité d'une des deux composantes de polarisation avec des effets de commutation en polarisation [107], sur lesquels il serait possible d'agir en contrôlant l'anisotropie du gain dans les boîtes quantiques.

En cryptographie quantique, pour la génération de photons intriqués par la recombinaison radiative en cascade des états excitonique et bi-excitonique [34], la dégénérescence effective des états brillants est cruciale. Le fait que le moment cinétique total ne soit plus un bon nombre quantique n'est pas important, tant que la symétrie de la boîte quantique est rétablie soit à l'aide d'un champ électrique dans le plan, soit à l'aide de l'effet Purcell pour avoir une largeur naturelle supérieure au splitting Δ_{XY} . L'existence éventuelle de forces d'oscillateurs différentes n'est là encore pas un problème à condition que la dynamique de recombinaison soit exclusivement fixée par des processus radiatifs. En effet, nous allons voir dans la partie suivante que, dans ce cas, le rendement radiatif est de 100% et les deux états brillants émettent le même nombre de photons. L'anisotropie des forces d'oscillateurs est une condition nécessaire mais non suffisante à l'observation d'une anisotropie de polarisation du signal de photoluminescence.

I.6 Relaxation longitudinale de spin

Le fait que le moment cinétique total ne soit plus un bon nombre quantique pour les états électroniques d'une boîte quantique demande de prendre quelques précautions quant à l'usage de l'expression "relaxation de spin". En physique des semiconducteurs, il existe d'abord un abus de langage courant dans l'utilisation du mot "spin" qui désigne en fait souvent le "moment cinétique total". D'autre part, l'expression "relaxation de spin" est parfois employée pour décrire des effets différents comme la relaxation de la cohérence entre différents états de la structure fine ou la relaxation de la population de ces états. Pour éviter toute confusion, nous reprenons la terminologie définie dans la théorie de la relaxation des spins nucléaires [30]. La "relaxation transverse de spin" correspond à la relaxation de la cohérence entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, qu'il est possible de sonder à l'aide de techniques résolues dans le temps basées sur une excitation pulsée, cohérente des deux états brillants [108]. La "relaxation longitudinale de spin" désigne la relaxation de population entre états de la structure fine, c'est-à-dire le transfert incohérent de population entre les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Sur des ensembles de boîtes quantiques InAs/GaAs, la dynamique de relaxation longitudinale de spin a été étudiée par des techniques de photoluminescence résolues dans le temps et en polarisation, sous excitation résonante en polarisation linéaire, des états brillants [109]. Les résultats obtenus sont spectaculaires puisqu'à basse température, le temps de relaxation longitudinale de spin est de l'ordre d'une dizaine de ns, soit un ordre de grandeur plus grand que le temps de vie radiatif. Cette phénoménologie correspond exactement à l'effet d'inhibition de la relaxation de spin, décrit page 23 dans le cadre du modèle de l'atome artificiel. D'autres études ont corroboré ce résultat et elles sont basées sur des techniques de type pompe-sonde [110, 111] ou écho de photons [82] qui nécessitent également une excitation résonante des états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$.

Nous montrons dans cette partie que la relaxation longitudinale de spin peut être étudiée sous excitation non-résonante, par l'étude de la polarisation linéaire du signal de photoluminescence. En effet, nous allons voir que l'anisotropie des forces d'oscillateurs des états brillants est une condition nécessaire mais non suffisante à l'apparition d'une anisotropie de polarisation, et que la relaxation longitudinale de spin est un moyen de la révéler.

I.6.1 De l'anisotropie des forces d'oscillateurs à l'anisotropie de polarisation linéaire

I.6.1.1 Thermo-activation de l'anisotropie de polarisation

Nous avons analysé la polarisation linéaire du signal de photoluminescence d'un ensemble de boîtes quantiques sous excitation non-résonante à 1.47 eV.

L'échantillon est constitué d'une quarantaine de plans de boîtes quantiques, non couplées électroniquement, avec une densité surfacique de l'ordre de 10^{11}cm^{-2} par plan de boîtes quantiques [98]. Le spectre de photoluminescence est élargi de manière inhomogène avec une largeur de 70 meV (Fig. I.6.1, encart). Le taux de polarisation linéaire du signal de photoluminescence présente une faible dépendance spectrale, comparable à la précision de notre mesure de $\pm 0.75\%$. D'autre part, il ne dépend pas de la polarisation du laser excitateur, ce qui montre que la mémoire de l'orientation des porteurs photo-crés est perdue lors du processus de relaxation vers les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$.

Nous avons étudié les variations du taux de polarisation R_L en fonction de la température, sur la gamme (10K-100K). Les résultats sont présentés sur la figure I.6.1 où nous observons une nette dépendance de R_L avec la température. A 10K, le taux de polarisation linéaire est de l'ordre de 3% ; il augmente vers 50K, puis, à partir de 80K, il sature à une valeur de 9%, identique à celle que nous avons mesurée à température ambiante.

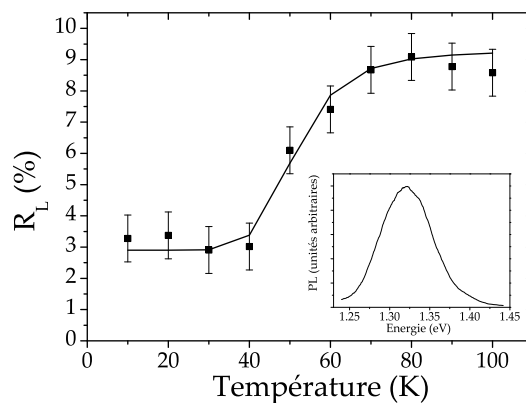


FIG. I.6.1 – Taux de polarisation linéaire d'un ensemble de boîtes quantiques InAs/GaAs en zone dense, sous excitation non-résonante en fonction de la température. Encart : spectre de photoluminescence, d'après [75].

Cet effet indique que l'anisotropie de polarisation du signal de photoluminescence n'est pas uniquement due à l'anisotropie des forces d'oscillateur, qui est un paramètre statique de la structure fine, et qu'un phénomène dynamique entre en jeu.

I.6.1.2 Relaxation longitudinale

Sur la figure I.6.1 est présenté un modèle à trois niveaux, dont la résolution des équations bilans va nous permettre de comprendre le lien entre anisotropie

de forces d'oscillateurs et relaxation longitudinale de spin dans l'existence d'une anisotropie de polarisation du signal de photoluminescence [112].

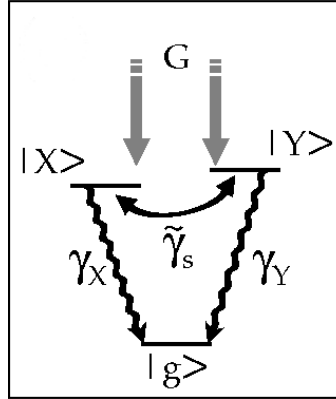


FIG. I.6.2 – Modélisation de la dynamique de relaxation à partir d'un système à trois niveaux : γ_X et γ_Y sont les taux de recombinaison radiative des deux états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, $\tilde{\gamma}_s$ le taux de relaxation longitudinale de spin, G le taux de photo-crédation, d'après [113].

Les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont peuplés de manière égale avec un taux de photo-crédation G , leur recombinaison radiative est caractérisée par des taux γ_X et γ_Y , et la relaxation longitudinale de spin par le taux $\tilde{\gamma}_s$. L'hypothèse d'un peuplement identique pour les deux états brillants est spécifique à l'excitation non-résonante de la boîte quantique qui conduit à une perte de la mémoire de la polarisation du laser exciteur. Dans le cas d'une excitation quasi-résonante, il faut tenir compte de l'anisotropie des taux de photo-crédation G_X et G_Y [74].

La résolution des équations bilans du modèle présenté sur la figure I.6.2 donne l'expression suivante pour le taux de polarisation linéaire :

$$R_L = \frac{\gamma_X n_X - \gamma_Y n_Y}{\gamma_X n_X + \gamma_Y n_Y} = \frac{\gamma_X - \gamma_Y}{\gamma_X + \gamma_Y + \gamma_X \gamma_Y / \tilde{\gamma}_s} \quad (\text{I.6.1})$$

$$= \eta_{XY} \frac{1}{1 + \gamma_R / \tilde{\gamma}_s} \quad (\text{I.6.2})$$

où n_X et n_Y sont les populations des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, η_{XY} l'anisotropie des forces d'oscillateurs (cf. Eq. (I.5.14) page 83) qui est égale à l'anisotropie des taux de recombinaison radiative γ_X et γ_Y , et γ_R leur moyenne géométrique ($1/\gamma_R = 1/\gamma_X + 1/\gamma_Y$).

Tout d'abord, nous vérifions bien que le taux de polarisation linéaire est nul si les états brillants ont la même force d'oscillateur ($\eta_{XY} = 0$). Par ailleurs, nous observons que R_L dépend du rapport entre le temps de relaxation longitudinale de spin et le temps de vie radiatif moyen. Dans la limite où la dynamique de

relaxation est essentiellement déterminée par la recombinaison radiative ($\tilde{\gamma}_s \ll \gamma_R$), l'anisotropie de polarisation du signal de photoluminescence disparaît. En effet, alors que les populations stationnaires dépendent de γ_X et γ_Y ($n_\beta = G/\gamma_\beta$ avec $\beta = X$ ou Y), les intensités de photoluminescence sont égales au taux de photo-création G ($I_{|\beta\rangle} \propto \gamma_\beta n_\beta \propto G$). Autrement dit, toute paire électron-trou créée sur l'état $|X\rangle$ ou $|Y\rangle$ se recombine en émettant un et un seul photon unique polarisé suivant (Ox) ou (Oy), et ce indépendamment du temps de vie radiatif de l'état : le rendement radiatif de recombinaison est séparément de 100% pour l'état $|X\rangle$ et pour l'état $|Y\rangle$.

En revanche, dans la limite inverse où la relaxation longitudinale de spin est très efficace par rapport à la recombinaison radiative ($\tilde{\gamma}_s \gg \gamma_R$), le taux de polarisation linéaire devient égal à l'anisotropie des forces d'oscillateurs ($R_L \sim \eta_{XY}$). Dans ce cas, la relaxation de spin efficace égalise les populations des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de sorte que leurs intensités de photoluminescence deviennent proportionnelles à leurs forces d'oscillateurs respectives ($I_{|\beta\rangle} \propto \gamma_\beta \hat{n}$ où \hat{n} est la population des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$).

En conséquence, nous interprétons l'augmentation du taux de polarisation linéaire avec la température de la figure I.6.1 comme la signature d'une thermo-activation de la relaxation longitudinale de spin. En utilisant l'équation (I.6.2), nous obtenons un excellent fit de nos données expérimentales (trait plein, Fig.I.6.1) en prenant une variation en température de $\tilde{\gamma}_s$ du type :

$$\tilde{\gamma}_s(T) = \tilde{\gamma}_s^0 + \Gamma_s \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{I.6.3})$$

où $1/\tilde{\gamma}_s^0$ est le temps de relaxation longitudinale de spin à température nulle, Γ_s un taux de relaxation, et E_a une énergie d'activation. Le fit de la figure I.6.1 est obtenu avec les paramètres suivants : $1/\tilde{\gamma}_s^0 \sim 5$ ns, $\Gamma_s \sim 4.10^3$ ns⁻¹, $E_a \sim 45$ meV, $1/\gamma_R \sim 1.2$ ns (d'après la valeur mesurée sur le même échantillon dans la Ref. [111]) et $\eta_{XY} \sim 9\%$ (fixée par la valeur de R_L à température ambiante). De fait, à basse température, le temps de relaxation longitudinale de spin est quatre à cinq fois plus grand que le temps de recombinaison radiative, et nous retrouvons l'effet d'inhibition de la relaxation de spin prévu par le modèle de l'atome artificiel et reporté dans les références [109, 110, 111, 82]. Lorsque la température augmente, l'influence de la matrice environnante conduit, via ses modes de vibration, à une accélération de la dynamique de relaxation longitudinale de spin, qui se produit en quelques dizaines de ps vers 100K.

Ces considérations qualitatives peuvent être précisées à la lumière de la compréhension théorique de ces processus par Tsitsishvili *et al.* [113, 114]. Tout d'abord, en ce qui concerne l'explication de la thermo-activation de la relaxation longitudinale de spin, ont été proposées des transitions virtuelles vers des états excités dans le cadre d'un couplage quadratique en l'interaction électron-phonon optique [113]. Ces mécanismes sont analogues à ceux qui ont été examinés page

54 dans la partie (I.4.2.1) consacrée à la discussion de l'élargissement de la raie à zéro-phonon, à la différence que la structure fine de l'état fondamental est prise en considération dans les travaux de Tsitsishvili *et al.*. Sont considérés des états de paire électron-trou excités dont la partie "enveloppe" est du type $|S_e, P_h\rangle$, et l'efficacité des processus est analysée en fonction du désaccord entre l'énergie d'un phonon optique et l'écart en énergie S_h-P_h . Les variations en fonction de la température des valeurs calculées du temps de relaxation longitudinale de spin peuvent être reproduites à l'aide d'un terme $\Gamma_s \exp(-E_a/kT)$, comme dans l'équation (I.6.3). Avec les paramètres de calcul de la Ref. [113], notre estimation de l'énergie d'activation de 45 meV correspond à un écart en énergie S_h-P_h d'une vingtaine de meV.

Dans le régime des basses températures ($T \lesssim 50\text{K}$), les transitions virtuelles assistées par l'absorption et l'émission de phonons optiques ont une efficacité très faible et la relaxation longitudinale de spin entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ est interprétée à partir du couplage aux phonons acoustiques [114]. Comme le potentiel de déformation commute avec le moment cinétique de spin, il ne peut pas y avoir de transfert direct de population entre les états brillants par absorption ou émission de phonons acoustiques. Un couplage indirect est cependant possible par le biais du mélange entre trous lourds et légers, dont le couplage par le hamiltonien $\vec{k} \cdot \vec{p}$ dépend des composantes du champ de déformation [29]. De fait, le temps de relaxation longitudinale de spin associé à ce processus dépend de l'écart en énergie E_{lh} entre les trous lourds et légers, et ce de manière quadratique. Pour un splitting lourd-léger E_{lh} de 10 meV, le temps de relaxation longitudinale est estimé à 1500 ns à 10K, pour un dédoublement des états brillants Δ_{XY} de 100 μeV [114].

La valeur de 10 meV pour l'écart en énergie entre les trous lourds et légers correspond à un mélange modéré des états de trous. Dans la partie précédente, nous avons vu que ce cas de figure s'applique aux ensembles denses de boîtes quantiques, où la structure fine de l'état fondamental peut être interprétée avec des états de paire électron-trou lourd. En conséquence, nous concluons que les valeurs du temps de relaxation longitudinale de spin mesurées à basse température sur des ensembles denses de boîtes quantiques (Fig. I.6.1, et références [109, 110, 111, 82]) peuvent être interprétées par un mécanisme de transfert de population assisté par phonons acoustiques dans le cadre d'un mélange modéré entre trous lourds et légers. Dans les ensembles dilués de boîtes quantiques, la relaxation longitudinale de spin est susceptible d'être accélérée en raison du mélange important entre les états de trous lourds et légers, et nous aborderons ce point dans la partie suivante.

Avant de présenter les résultats expérimentaux sur des boîtes quantiques en zone diluée, nous souhaitons faire une remarque concernant l'observation de l'effet d'inhibition de la relaxation de spin, qui est conforme aux prévisions du modèle de l'atome artificiel. Dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques,

l'interaction hyperfine joue un rôle négligeable dans la relaxation de spin, qui est essentiellement due aux mécanismes impliquant le couplage spin-orbite et l'interaction d'échange. Comme ces mécanismes sont liés au mouvement des porteurs, ils sont supposés être inhibés dans une boîte quantique où les électrons sont confinés dans les trois dimensions de l'espace. En fait, si des temps de relaxation longitudinale de spin de l'ordre d'une dizaine de ns ont pu être mesurés dans des boîtes quantiques, c'est en partie grâce à la levée de dégénérescence des états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Compte tenu que le moment magnétique des noyaux ($J^{As}=3/2$ et $J^{In}=9/2$) est de quelques magnétons nucléaires, soit une séparation en énergie Δ_n entre deux états nucléaires de spins différents de l'ordre de 10^{-5} μeV dans le champ terrestre, l'efficacité de la relaxation de spin par interaction hyperfine électron-noyaux est fortement conditionnée par la conservation de l'énergie lors du processus d'interaction. Si la dégénérescence des états de paire électron-trou est levée (Δ_{XY} grande devant la largeur des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, qui est elle-même très grande devant Δ_n), le passage entre deux états de paire électron-trou de spins électroniques différents devient fortement non-résonant pour l'interaction hyperfine entre les spins nucléaires et le spin de l'électron [115]. Dans des boîtes quantiques chargées où les effets de l'interaction d'échange électron-trou sont annulés et où les états brillants sont dégénérés [81], des expériences récentes mettent en lumière que la relaxation de spin de l'électron est déterminée par l'interaction hyperfine avec les spins nucléaires, avec des temps caractéristiques de l'ordre de 500 ps [116]. En définitive, dans des boîtes quantiques neutres, si le confinement permet de réduire l'efficacité des mécanismes impliquant le couplage spin-orbite et l'interaction d'échange, c'est néanmoins le dédoublement des états brillants qui permet de s'affranchir des effets de l'interaction hyperfine.

I.6.2 Un exemple de relaxation longitudinale efficace à l'échelle de la boîte quantique unique

L'étude expérimentale de la relaxation longitudinale de spin est très délicate à l'échelle de la boîte quantique unique si elle est abordée par des techniques d'excitation résonante des états brillants. Jusqu'à présent, elle n'a pu être effectuée que dans des boîtes quantiques aux défauts d'interface de puits quantiques GaAs/AlAs et la seule publication sur ce thème indique que la relaxation longitudinale de spin se produit en un temps -particulièrement court- de 100 ps [117]. En tirant profit de l'anisotropie des forces d'oscillateurs des états brillants, nous avons montré dans le paragraphe précédent que la dynamique de relaxation longitudinale de spin peut être étudiée à partir de l'anisotropie de polarisation linéaire du signal de photoluminescence en excitation non-résonante.

Nous en présentons un exemple à l'échelle de la boîte quantique unique par des expériences sous excitations continue et pulsée d'une boîte quantique fortement

anisotrope, située dans une zone diluée. Ces expériences nous permettent d'étudier les différents mécanismes en jeu dans la relaxation longitudinale de spin, alors que les mesures réalisées sous excitation continue ne donnent accès qu'à la valeur effective totale $\tilde{\gamma}_s$ du taux de relaxation longitudinale de spin. Les expériences résolues en temps sur boîte quantique unique nous permettent d'étudier le transfert de population directe entre états brillants ainsi que le transfert indirect impliquant une relaxation de population vers les états noirs. Les résultats que nous allons présenter se révèlent être très différents de ceux obtenus sur l'ensemble de boîtes quantiques en zone dense.

I.6.2.1 Dynamique de recombinaison résolue en polarisation

D'un point de vue expérimental, la mesure d'un taux de polarisation linéaire en spectroscopie de photoluminescence est moins précise sur une boîte quantique unique que sur un ensemble. En micro-photoluminescence, notre erreur expérimentale sur R_L est de l'ordre de $\pm 5\%$ (contre $\pm 0.75\%$ en macro-photoluminescence), ce qui rend difficile, à l'échelle de la boîte quantique unique, une étude quantitative comparable à celle menée sur un ensemble de boîtes quantiques (Fig. I.6.1).

Lors de notre étude systématique du taux de polarisation linéaire sur quatre échantillons différents (Fig. I.5.4 page 80), nous n'avons pas observé, à notre erreur expérimentale près, de variations de R_L avec la température dans la gamme (10K-100K) [101, 74]. Pour les échantillons en zone dense où la faible valeur de l'écart quadratique moyen σ_{R_L} est comparable à notre erreur expérimentale, il est possible que nous ne résolvions pas la légère augmentation de R_L avec la température³. Pour les échantillons en zone diluée, la mesure de valeurs élevées de R_L qui restent constantes avec la température, nous indique que le taux de polarisation linéaire a déjà atteint à 10K sa valeur à saturation η_{XY} . En d'autres termes, nous pouvons affirmer, pour ces boîtes quantiques anisotropes situées en zone diluée, que le temps de relaxation longitudinale de spin est petit devant le temps de recombinaison radiative. Cependant une étude quantitative de la relaxation longitudinale de spin n'est pas possible en excitation stationnaire car le temps de vie radiatif n'est pas connu de manière exacte.

Nous avons mené des expériences résolues en temps et en polarisation de l'intensité du signal de photoluminescence dans le cas modèle d'une boîte quantique très anisotrope ($R_L \sim 85\%$). Sur la figure I.6.3(a), nous présentons l'intensité du signal à 5K pour des directions d'analyse suivant les axes (Ox) et (Oy), et dans les deux cas, les données expérimentales sont bien reproduites par la convolution (trait plein) de la fonction de réponse du détecteur avec une exponentielle de

³Etant donné que les variations de R_L avec la température sont plus petites que notre erreur expérimentale, cela justifie a posteriori que la valeur de R_L mesurée à 10K est une bonne estimation de η_{XY} , à notre erreur expérimentale près

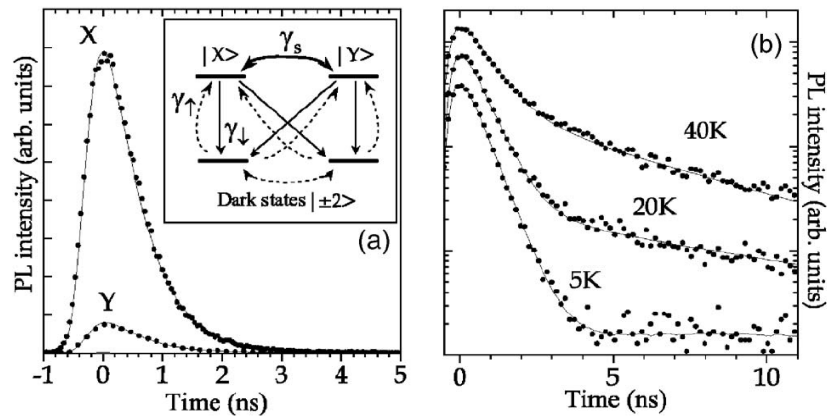


FIG. I.6.3 – (a) Intensité du signal de photoluminescence en fonction du temps, à 5K, pour les deux directions d’analyse (Ox) et (Oy). (b) Etude en fonction de la température de la dynamique du signal analysé suivant (Ox) et présenté sur une échelle semi-logarithmique. Encart : modélisation de la dynamique de relaxation de population entre les états brillants et noirs, d’après [113].

temps caractéristique 450 ps. Le rapport des intensités $I_{|X\rangle}(t)$ et $I_{|Y\rangle}(t)$ présente une valeur constante au cours du temps, qui coïncide avec la valeur mesurée en excitation stationnaire. Comme nous allons le voir dans la partie suivante, cet élément va nous permettre de quantifier le transfert *direct* de population entre les états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Sur la figure I.6.3(b), nous montrons les résultats d’une étude en fonction de la température de la dynamique du signal de photoluminescence analysé suivant (Ox). Lorsque la température augmente, nous constatons un ralentissement progressif de la dynamique de recombinaison avec un comportement bi-exponentiel [112]. Ce comportement provient de la relaxation de population entre états brillants et noirs, qui permet un transfert *indirect* de population entre les états brillants.

I.6.2.2 Influence des états noirs

Afin d’extraire des informations quantitatives sur la relaxation longitudinale de spin, nous caractérisons la dynamique de relaxation de population comme indiqué dans l’encart de la figure I.6.3, où γ_s est le taux de transfert entre états brillants, γ_\downarrow le taux de transfert d’un état brillant vers un état noir et γ_\uparrow dans le cas inverse. Selon le modèle proposé dans la référence [118], nous supposons que le passage entre états brillants et noirs est assisté par phonons acoustiques de sorte que $\gamma_\downarrow = \gamma_0(N + 1)$ et $\gamma_\uparrow = \gamma_0 N$ où γ_0 est le taux de relaxation d’un état brillant vers un état noir à température nulle, $N = 1/[\exp(\Delta_{NB}/k_B T) - 1]$ est le facteur d’occupation de Bose des phonons acoustiques, et Δ_{NB} l’écart en énergie entre les états brillants et noirs. Enfin, comme sur la figure I.6.2, les taux

de recombinaison radiative des états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont respectivement γ_X et γ_Y , et nous introduisons en plus un taux de recombinaison des états noirs γ_N .

La résolution des équations bilans de ce système conduit, en régime stationnaire, à un taux de polarisation linéaire R_L dont l'expression est exactement celle de l'équation (I.6.2) à condition de remplacer $\tilde{\gamma}_s$ par $\gamma_s + \gamma_\downarrow$. Le taux de relaxation longitudinale de spin $\tilde{\gamma}_s$ apparaît comme un taux effectif qui rend compte de l'existence en parallèle de canaux de transfert entre états brillants (et il est d'ailleurs possible d'imaginer d'autres mécanismes impliquant des états à plus haute énergie par exemple). De fait, les expériences de photoluminescence sous excitation continue ne permettent que la mesure du taux effectif de relaxation longitudinale $\tilde{\gamma}_s$.

Grâce à l'excitation pulsée qui nous donne accès à la dynamique de recombinaison, nous pouvons quantifier l'influence respective des différents mécanismes envisagés. Les équations bilans du système représenté sur l'encart de la figure I.6.3 forment un système d'équations linéaires couplées dont la résolution conduit à un déclin multi-exponentiel du signal de photoluminescence des états brillants, avec en particulier une composante longue provenant du repeuplement des états brillants par les états noirs avec le taux γ_\uparrow . Les fits présentés en trait plein sur la figure I.6.3(b) sont obtenus pour les valeurs suivantes des paramètres du problème : $1/\gamma_R \sim 450$ ps, $1/\gamma_N \sim 8.5$ ns, $1/\gamma_s \sim 100$ ps, $1/\gamma_0 \sim 440$ ns et $\Delta_{NB} \sim 250$ μ eV ; ces deux derniers paramètres sont liés et ne peuvent être estimés séparément, aussi avons-nous fixé Δ_{NB} à la valeur publiée dans la référence [90]. Enfin, nous supposons que les états brillants et noirs sont peuplés de manière équiprobable à $t=0$, puisque nous sommes en excitation non-résonante.

Quelques commentaires sur la détermination des différents paramètres nous permettent de préciser leur influence sur la dynamique du système. L'estimation de γ_s , taux de transfert direct entre états brillants, est réalisée à partir de la mesure de déclins identiques pour les signaux de photoluminescence des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, i.e. l'observation d'un rapport $I_{|X\rangle}(t)/I_{|Y\rangle}(t)$ constant dans le temps, à notre résolution expérimentale temporelle près. Ensuite, à 5K où la dynamique du signal de photoluminescence est mono-exponentielle sur deux ordres de grandeur, le temps de déclin correspond en première approximation à l'inverse de la moyenne géométrique γ_R des taux de recombinaison radiative. L'estimation du taux de transfert γ_0 entre états brillants et noirs est effectuée à partir de l'apparition aux temps longs d'une deuxième composante exponentielle, dont le temps de déclin correspond à $1/\gamma_N$. Plus précisément, le repeuplement des états brillants par les états noirs se produit avec un taux γ_\uparrow , et tant que $\gamma_\uparrow < \gamma_\downarrow$ (ce qui est le cas pour la figure I.6.3 à 5K, où $\gamma_\uparrow/\gamma_\downarrow \sim 0.5$), γ_\uparrow/γ_R détermine le rapport entre les poids des deux exponentielles de temps de déclin $1/\gamma_R$ et $1/\gamma_N$. Lorsque la température s'accroît (Fig. I.6.3(b)), les deux paramètres γ_\uparrow et γ_\downarrow augmentent, et tendent à s'égaliser, et nous nous rapprochons d'une situation où le déclin du signal de photoluminescence est quasi-exponentiel avec un temps qui caractérise

la dynamique de recombinaison globale des états brillants et noirs.

Sur l'exemple de la figure I.6.3(b), le temps $1/\gamma_0$ de 440 ns est particulièrement élevé et sur d'autres boîtes quantiques, nous avons mesuré des temps plus faibles allant jusqu'à 30 ns. Ces temps sont comparables à ceux plus récemment mesurés par Smith *et al.* [119]. Dans tous les cas, nous constatons que le temps de transfert direct entre états brillants $1/\gamma_s$ est plus petit d'un à deux ordres de grandeur que le temps de passage vers les états noirs $1/\gamma_\downarrow$. En conséquence, nous concluons que la relaxation longitudinale de spin est déterminée dans nos boîtes quantiques par un transfert direct de population entre états brillants et que le canal de transfert indirect via les états noirs joue un rôle marginal ($\gamma_\downarrow \ll \gamma_s$ dans $\tilde{\gamma}_s = \gamma_s + \gamma_\downarrow$). Néanmoins, notons que les états noirs jouent un rôle important sur la dynamique de recombinaison des états brillants puisque le déclin du signal de photoluminescence des états brillants est non-exponentiel.

I.6.2.3 Origine de la relaxation longitudinale de spin efficace

Le fait que la relaxation longitudinale de spin se produise en une centaine de ps dans les boîtes quantiques situées en zone diluée constitue un résultat très original qui brise l'image d'une inhibition de la relaxation de spin à basse température, image issue du modèle de l'atome artificiel et confirmée pour les ensembles de boîtes quantiques en zone dense (Fig. I.6.1, et références [109, 110, 111, 82]).

Avant d'en discuter l'origine physique possible, nous souhaitons attirer l'attention du lecteur sur l'obtention d'un résultat similaire sur une boîte quantique unique de défaut d'interface [117]. Par une technique résolue en temps de type pompe-sonde, l'étude de la transmission différentielle en fonction des polarisations de la pompe et de la sonde révèlent que la relaxation longitudinale de spin dans une boîte quantique *faiblement anisotrope* se produit également en une centaine de ps à basse température. Ce travail, assez peu connu en dépit de la notoriété des auteurs, montre que la prédiction d'une inhibition de la relaxation de spin est infirmée pour une boîte quantique en régime de confinement faible. Certes, la grande force d'oscillateur des états brillants dans ce type de boîte quantique conduit à un temps de recombinaison radiative de quelques centaines de ps, plus court que dans les boîtes quantiques InAs/GaAs, si bien que le temps de relaxation longitudinale de spin est plus long que le temps de vie radiatif. Cependant, il n'y a pas de lien direct entre ces deux processus de relaxation et un temps d'une centaine de ps constitue une valeur absolue très faible pour un temps de relaxation longitudinale de spin dans une boîte quantique.

Nos résultats obtenus pour des boîtes quantiques en zones dense et diluée montre des différences très importantes quant à l'efficacité de la relaxation longitudinale de spin. A basse température, elle se produit en quelques ns en zone dense, ou au contraire en une centaine de ps pour des boîtes quantiques très anisotropes en zone diluée. Dans la partie (I.5) sur la structure fine de l'état

fondamental, nous avons identifié une première différence entre boîtes quantiques en zones dense et diluée concernant l'anisotropie de leurs forces d'oscillateurs, pour laquelle le mélange entre trous lourds et légers est susceptible de jouer un rôle important. La question est alors de savoir si la modification des propriétés électroniques qui conduit à l'anisotropie des forces d'oscillateurs peut également expliquer la différence entre les dynamiques de relaxation longitudinale de spin.

Un premier élément de réponse est apporté par l'étude théorique de Tsitsishvili *et al.* sur la relaxation de population assistée par phonons acoustiques dans le cadre d'un mélange entre trous lourds et légers [114]. En effet, nous avons vu dans la partie (I.6.1.2) que le temps de relaxation longitudinale de spin associé à ce processus dépend de manière quadratique de l'écart en énergie entre les trous lourds et légers. Pour un splitting de $10 \mu\text{eV}$ entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, un temps de relaxation longitudinale inférieure à la nanoseconde correspondrait à un splitting lourd-léger bien inférieure à un meV. Ces estimations suggèrent qu'un important mélange entre trous lourds et légers conduit à des temps sub-ns pour le transfert direct de population entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, cependant l'utilisation des expressions calculées dans la Ref. [114] est sujette à caution dans la mesure où le mélange lourds-légers est traité comme une perturbation. Une estimation correcte de l'efficacité de ces processus nécessite de reprendre globalement le problème en étendant la base de calculs à tous les états de paire formés avec des électrons et des trous lourds et légers.

Dans les boîtes quantiques aux défauts d'interface de puits quantiques GaAs/AlAs, le temps de relaxation longitudinale de spin d'une centaine de ps peut également provenir du mélange entre trous lourds et légers. Dans ce système plus simple où la contrainte joue un rôle moins important, le splitting entre trous lourds et légers est d'une vingtaine de meV pour des puits quantiques de 4 nm d'épaisseur, tels que ceux utilisés pour obtenir des boîtes quantiques [120]. Puisque la masse des trous légers dans le plan est plus élevée que celle des trous lourds, le confinement latéral réduit le splitting lourd-léger, ce qui conduit à un fort mélange entre les états de trous [121].

En résumé, qu'ils s'agissent de boîtes quantiques InAs/GaAs situées dans des zones diluées ou de boîtes quantiques GaAs/AlAs formées aux défauts d'interface de puits quantiques, les temps de relaxation longitudinale de spin d'une centaine de ps proviennent vraisemblablement d'un mélange entre états de trous lourds et légers, qui favorise la relaxation de population assistée par phonons acoustiques entre les états brillants. D'autres mécanismes ne sont cependant pas à exclure, en particulier l'interaction d'échange entre les porteurs confinés dans la boîte quantique et ceux délocalisés dans la couche de mouillage (des résultats présentés dans le manuscrit de thèse d'I. Favero montrent des indications de la présence de tels phénomènes pour un ensemble de boîtes quantiques dans le cas d'une excitation sous le seuil d'absorption de la couche de mouillage [74]). Ces processus sont susceptibles d'affecter la relaxation de spin préférentiellement

lors d'expériences en excitation non-résonante, et ils se caractérisent a priori par des effets importants en puissance d'excitation. Le mélange entre états de trous lourds et légers permet en revanche de faire apparaître un mécanisme de relaxation longitudinale de spin pour des expériences en excitations résonante [117] ou non-résonante [112].

I.6.3 Conclusion

L'inhibition de la relaxation de spin dans des boîtes quantiques de semiconducteurs est une des prévisions du modèle de l'atome artificiel qui a été confirmée, pour des ensembles de boîtes quantiques en *zone dense*, par des expériences réalisées sous excitation résonante des états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Dans des ensembles denses de boîtes quantiques, les temps de relaxation longitudinale de spin d'une dizaine de ns confirment la réduction d'efficacité des mécanismes de relaxation de spin qui sont connus dans les semiconducteurs massifs et les puits quantiques et qui impliquent le couplage spin-orbite ou l'interaction d'échange. Cependant, si la relaxation longitudinale de spin est fortement inhibée à basse température, c'est aussi parce que la levée de dégénérescence des états brillants limite les effets de l'interaction hyperfine. Dans des boîtes quantiques chargées où la dégénérescence des états brillants est rétablie à cause d'une annulation du couplage coulombien d'échange [81], la relaxation de spin de l'électron est limitée par l'interaction hyperfine avec des temps caractéristiques de l'ordre de 500 ps [116].

Nous avons montré que l'étude de la relaxation longitudinale de spin ne requiert pas nécessairement une excitation résonante des états brillants et que l'anisotropie des forces d'oscillateurs des états brillants ouvre une voie pour l'étude de la relaxation longitudinale sous excitation non-résonante à partir de l'étude de l'anisotropie de polarisation linéaire du signal de photoluminescence.

La mise en oeuvre de cette technique dans des expériences de micro-photoluminescence permet l'étude de la relaxation longitudinale de spin à l'échelle de la boîte quantique unique. Sur des boîtes quantiques anisotropes situées en *zone diluée*, nous mesurons des temps de relaxation longitudinale particulièrement courts, de l'ordre d'une centaine de ps. Cette observation brise l'image universelle d'une inhibition de la relaxation de spin dans des boîtes quantiques. Des études résolues en temps montrent que la relaxation longitudinale de spin est déterminée dans nos boîtes quantiques par un transfert direct de population entre états brillants et que le canal de transfert indirect via les états noirs joue un rôle marginal.

La relaxation de population entre états brillants $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ peut être assistée par phonons acoustiques dans le cadre d'un mélange entre trous lourds et légers. De fait, la relaxation longitudinale de spin efficace pour des boîtes quantiques en zone diluée provient vraisemblablement de l'important mélange entre trous lourds et légers qui semble caractériser ces boîtes quantiques. Si le modèle de l'atome

artificiel ne considère que des états de paire électron-trou lourd, nous constatons que le mélange entre états de trous lourds et légers affecte non seulement la structure fine de l'état fondamental mais également la dynamique de relaxation longitudinale de spin. Dans le système InAs/GaAs où la contrainte joue un rôle central, c'est l'anisotropie structurale des boîtes quantiques en zone diluée qui est vraisemblablement responsable du fort mélange lourds-légers alors que dans le système faiblement contraint des boîtes quantiques aux défauts d'interface de puits quantiques GaAs/AlAs, c'est plus simplement le confinement latéral. Finalement, il semble que l'inhibition de la relaxation longitudinale de spin soit directement reliée au splitting entre états de trous lourds et légers, ce qui illustre l'ampleur des implications de cette hypothèse initiale du modèle artificiel.

I.7 Vers l'atome artificiel

De la présentation du modèle de l'atome artificiel à la mise à jour successive de ces limites, c'est finalement toute la richesse de la physique des semiconducteurs que nous avons retrouvée et parcourue dans ce mémoire. Une boîte quantique de semiconducteurs constitue certes un système modèle en physique du solide, où le confinement tri-dimensionnel des porteurs nous entraîne naturellement à rechercher des analogies avec la physique atomique et l'optique quantique. Si cette démarche intellectuelle s'est montrée très fructueuse, il est cependant réducteur, et souvent faux, de limiter les propriétés électroniques et optiques d'une boîte quantique à celle d'un système isolé, comparable à un atome artificiel. La simple discrétisation des états électroniques ne permet pas de se ramener au problème équivalent d'un macro-atome. La variété des effets de l'environnement que nous avons contribué à mettre à jour illustre le rôle fondamental de la matrice, tant d'un point de vue structural sur les symétries de la boîte quantique à des échelles micro- et méso-scopiques, que d'un point de vue dynamique sur les mécanismes de relaxation impliquant les phonons ou les charges au voisinage de la boîte quantique.

Pour les recherches futures sur les boîtes quantiques, la perspective la plus intéressante consiste probablement en une inversion de la logique qui vise à extraire les aspects de la physique des boîtes quantiques qui sont conformes à la vision simplificatrice du modèle de l'atome artificiel. C'est de la compréhension profonde de la complexité des phénomènes mis en jeu dans ce système de matière condensée que pourront émerger des stratégies de fabrication et de préparation d'une boîte quantique en vue d'en faire un système maîtrisé et contrôlable.

Un certain nombre de travaux se placent dans cette perspective. Le contrôle de la charge dans une boîte quantique unique placée dans une jonction Schottky permet de modifier la structure fine de l'état fondamental et l'annulation de l'interaction coulombienne d'échange dans une boîte quantique de symétrie réduite, en fonction de la tension de grille, constitue un résultat tout à fait remarquable [81]. Sur des ensembles de boîtes quantiques insérées dans une jonction Schottky, la combinaison de séquences de pompage optique et de séparation des électrons et des trous à l'aide de la tension de grille a montré la possibilité de stocker un électron polarisé de spin sur des échelles de temps de l'ordre de la ms, en ayant recours à un champ magnétique qui lève la dégénérescence des états brillants [122]. Enfin, la démonstration récente de l'insertion d'un ion manganèse unique dans une boîte quantique de semiconducteurs II-VI ouvre la possibilité de contrôler le spin d'un atome unique par des techniques d'orientation optique [123]. Dans un autre registre, le contrôle de l'environnement électromagnétique d'une boîte quantique placée dans une microcavité permet, grâce à l'effet Purcell, de diminuer le temps de vie radiatif et ainsi d'abaisser la contribution relative des mécanismes de déphasage [83]. L'extension de ces idées à la densité des modes

de phonon pourrait conduire à un contrôle de l'interaction électron-phonon, à l'aide de nano-résonateurs mécaniques dans lesquels seraient placées les boîtes quantiques. Tous ces exemples illustrent le lien de plus en plus étroit entre nanophysique et nanotechnologie, où les efforts réalisés dans la préparation du système {boîte quantique+environnement} permettent d'étudier un système modèle simple, et en quelque sorte de s'approcher de la situation limite d'un atome artificiel.

La réduction de l'efficacité des processus de décohérence semble particulièrement importante dans le cas d'une excitation résonante de l'état fondamental. Nous explorons actuellement la possibilité de réaliser des expériences de fluorescence résonante sur une boîte quantique unique par une excitation en onde guidée. Dans ce cas, l'enjeu est de bénéficier des techniques de l'optique ultra-rapide pour manipuler de manière cohérente avec des impulsions femtosecondes les états de la boîte quantique sur des échelles de temps de l'ordre de la ns. Là-encore, les nanotechnologies sont indispensables dans la mesure où ces expériences nécessitent la fabrication d'échantillons spécifiques et nanostructurés. Par ailleurs, l'insertion des boîtes quantiques dans des nanocavités à base de cristaux photoniques est une autre variante de l'utilisation des potentialités de l'optique guidée pour manipuler de manière cohérente les boîtes quantiques. La technologie des cristaux photoniques permet par ailleurs d'atteindre des facteurs de qualité de l'ordre de quelques 10^5 qui devrait élargir le champ d'investigation du contrôle cohérent au régime de couplage fort [6].

Bibliographie

- [1] M. A. Kastner. *Artificial atoms. Physics Today*, 46 :24, 1993.
- [2] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. *A quantum dot single-photon turnstile device. Science*, 290 :2282, 2000.
- [3] C. Santori, D. Fatta, J. Vučkovic, G. Solomon, and Y. Yamamoto. *Indistinguishable photons from a single-photon device. Nature*, 419 :594, 2002.
- [4] 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*, 418 :612, 2002.
- [5] 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*, 432 :197, 2004.
- [6] 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*, 432 :200, 2004.
- [7] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham. *An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot. Science*, 301 :809, 2003.
- [8] 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.
- [9] J. M. Gérard, J. B. Genin, J. Lefebvre, J. M. Moison, N. Lebouche, and F. Barthe. *Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. J. Cryst. Growth*, 150 :351, 1995.
- [10] Walter Schottky Institute. <http://www.wsi.tu-muenchen.de>.
- [11] T. Walther, A. G. Cullis, D. J. Norris, , and M. Hopkinson. *Nature of the Stranski-Krastanow transition during epitaxy of InGaAs on GaAs. Phys. Rev. Lett.*, 86 :2381, 2001.
- [12] G. Bester and A. 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.

- [13] P. Y. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, second edition, 1999.
- [14] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1996.
- [15] J. Y. Marzin and G. Bastard. *Calculation of the energy-levels in InAs/GaAs quantum dots*. *Solid State Communications*, 92 :437, 1994.
- [16] A. Catellani and P. Ballone. *Islands at semiconductor interfaces*. *Phys. Rev. B*, 45 :14197, 1992.
- [17] A. Jankovics. *Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin*. PhD thesis, Université Paris VI, 2004.
- [18] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique quantique*. Hermann, Editeurs des sciences et des arts, 1992.
- [19] A. Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [20] O. Verzele. *Interaction électron-phonon LO dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [21] P. Hawrylak. *Excitonic artificial atoms : Engineering optical properties of quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 60 :5597, 1999.
- [22] U. Bockelmann and G. Bastard. *Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases*. *Phys. Rev. B*, 42 :8947, 1990.
- [23] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès, and C. Weisbuch. *Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems*. *Phys. Rev. B*, 44 :10945, 1991.
- [24] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. Editions du CNRS, 1988.
- [25] A. Barenco, D. Deutsch, A. Ekert, and R. Jozsa. *Conditional quantum dynamics and logic gates*. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :4083, 1995.
- [26] E. Biolatti, R. Iotti, P. Zanardi, and F. Rossi. *Quantum information processing with semiconductor macroatoms*. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :5647, 2000.
- [27] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*. *Nature*, 409 :46, 2001.
- [28] J. Bylander, I. Robert-Philip, and I. Abram. *Interference and correlation of two independent photons*. *Eur. Phys. J. D*, 22 :295, 2003.
- [29] F. Meier and B. Zakharchenya, editors. *Optical orientation, Modern problems in condensed matter sciences vol.8*. North-Holland, 1984.

- [30] A. Abragam. *The principles of nuclear magnetism*. Oxford, Clarendon Press, 1961.
- [31] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov. *Spin relaxation in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 61 :12639, 2000.
- [32] A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, and A. Small. *Quantum information processing using quantum dot spins and cavity QED*. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :4204, 1999.
- [33] A. Aspect, J. Dalibard, and G. Roger. *Experimental test of Bell's inequalities using time-varying analyzers*. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :1804, 1982.
- [34] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto. *Regulated and entangled photons from a single quantum dot*. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :2513, 2000.
- [35] 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.
- [36] 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, 2002.
- [37] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa. *Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states*. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :004114, 1999.
- [38] C. Kammerer. *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques : effets de l'environnement*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [39] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, and J. M. Gérard. *Photoluminescence up-conversion in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :207401, 2001.
- [40] G. Cassabois, C. Kammerer, R. Sopracase, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, and J. M. Gérard. *Disorder-induced photoluminescence up-conversion in InAs/GaAs quantum-dot samples*. *J. Appl. Phys.*, 91 :5489, 2002.
- [41] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. *Continuous absorption background and decoherence in quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :216804, 2002.
- [42] H. Htoon, P. J. Cox, and V. I. Klimov. *Continuous absorption background and decoherence in quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :187402, 2004.
- [43] R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. *Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled Stranski-Krastanow quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 68 :235301, 2003.

- [44] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. *Excitonic polarons in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :146803, 2002.
- [45] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D. S. Katzer, and D. G. Steel. *Coherent optical control of the quantum state of a single quantum dot*. *Science*, 282 :1473, 1998.
- [46] C. Kammerer, G. Cassaboïs, C. Voisin, C. Delalande, 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, 2002.
- [47] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F. Krauss. *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 63 :073307, 2001.
- [48] S. Rudin and T. L. Reinecke. *Effects of exciton-acoustic-phonon scattering on optical line shapes and exciton dephasing in semiconductors and semiconductor quantum wells*. *Phys. Rev. B*, 66 :085314, 2002.
- [49] T. Takagahara. *Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 60 :2638, 1999.
- [50] W. Braun, M. Bayer, A. Forchel, H. Zull, J. P. Reithmaier, A. I. Filin, and T. L. Reinecke. *Enhanced exciton-phonon scattering in $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ quantum wires*. *Phys. Rev. B*, 56 :12096, 1997.
- [51] P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, and F. Martelli. *Well-width dependence of exciton-phonon scattering in $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ single quantum wells*. *Phys. Rev. B*, 59 :2215, 1999.
- [52] G. Cassaboïs, A. L. C. Triques, F. Bogani, C. Delalande, Ph. Roussignol, and C. Piermarocchi. *Polariton-acoustic-phonon interaction in a semiconductor microcavity*. *Phys. Rev. B*, 61 :1696, 2000.
- [53] R. Ferreira and G. Bastard. *Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :2818, 1999.
- [54] H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, T. Takagahara, and C. K. Shih. *Carrier relaxation and quantum decoherence of excited states in self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 63 :241303, 2001.
- [55] D. Darson. *Advanced detector and optical fabrication technologies for implementing improved spectroscopic instrumentation CCD detector systems for "Semiconductor Nanostructures"*, volume 336 of *Astrophysics and space science library*, chapter Non-Astronomical Applications. Springer astronomy book, 2005.
- [56] I. Favero, G. Cassaboïs, 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.

- [57] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. *Phys. Rev. B*, 63 :155307, 2001.
- [58] 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.
- [59] C. B. Duke and G. D. Mahan. *Phonon-Broadened Impurity Spectra. I. Density of States*. *Phys. Rev.*, 139 :A1965, 1965.
- [60] M. Bayer and A. Forchel. *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs$ self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :041308, 2002.
- [61] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito, and K. Nishi. *Homogeneous linewidth broadening in a $In_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs$ single quantum dot at room temperature investigated using a highly sensitive near-field scanning optical microscope*. *Phys. Rev. B*, 63 :121304, 2001.
- [62] 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.
- [63] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, M. Perrin, C. Delalande, Ph. Roussignol, and J. M. Gérard. *Interferometric correlation spectroscopy in single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 81 :2737, 2002.
- [64] 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.
- [65] F. Vallée and F. Bogani. *Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs*. *Phys. Rev. B*, 43 :12049, 1991.
- [66] F. Vallée. *Time-resolved investigation of coherent LO-phonon relaxation in III-V semiconductors*. *Phys. Rev. B*, 49 :2460, 1994.
- [67] A. V. Uskov, A. P. Jauho, B. Tromborg, J. Mørk, and R. Lang. *Dephasing times in quantum dots due to elastic LO phonon-carrier collisions*. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :1516, 2000.
- [68] E. A. Muljarov and R. Zimmermann. *Dephasing in quantum dots : quadratic coupling to acoustic phonons*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :237401, 2004.
- [69] E. A. Muljarov and R. Zimmermann. *Exciton dephasing in quantum dots and quantum dot molecules*. *Proceedings of OECS9-Southampton, UK*, 2005.
- [70] R. Zimmermann and E. Runge. *Dephasing in quantum dots via electron-phonon interaction*. *Proceedings of the 26th ICPS, Edinburgh, Scotland*, 2002.

- [71] G. Ortner, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Rudin, T. L. Reinecke, 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.
- [72] 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.
- [73] D. Birkedal, K. Leosson, and J. M. Hvam. *Long lived coherence in self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :227401, 2001.
- [74] I. Favero. *Décohérence, symétries et relaxation de spin dans des boîtes quantiques de semiconducteurs*. PhD thesis, Université Paris VI, 2005.
- [75] A. V. Uskov, I. Magnusdottir, B. Tromborg, J. Mørk, and R. Lang. *Line broadening caused by Coulomb carrier-carrier correlations and dynamics of carrier capture and emission in quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :1679, 2001.
- [76] A. Abragam. *The principles of nuclear magnetism*. Clarendon press, Oxford, first edition, 1961.
- [77] W. Demtröder. *Laser spectroscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 1996.
- [78] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus. *Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals*. *Nature*, 383 :802, 1996.
- [79] N. Panev, M.-E. Pistol, V. Zwiller, L. Samuelson, W. Jiang, B. Xu, , and Z. Wang. *Random telegraph noise in the photoluminescence of individual Ga_xIn_{1-x}As quantum dots in GaAs*. *Phys. Rev. B*, 64 :045317, 2001.
- [80] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Few-particle effects in single CdTe quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :121314, 2002.
- [81] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff. *Voltage-controlled optics of a quantum dot*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :217401, 2004.
- [82] 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.
- [83] 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*, 72 :041303, 2005.
- [84] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff, and A. Imamoglu. *Deterministic coupling of single quantum dots to single nanocavity modes*. *Science*, 308 :1158, 2005.

- [85] 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 :003005, 1996.
- [86] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schafer, 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 $In_{0.60}Ga_{0.40}As$ quantum dots. Phys. Rev. Lett.*, 82 :001748, 1999.
- [87] 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 :000425, 2000.
- [88] R. S. Knox. *Theory of excitons*. Academic Press, New York, 1963.
- [89] G. E. Pikus and G. L. Bir. *Exchange interactions in excitons in semiconductors. Soviet Physics JETP*, 33 :108, 1971.
- [90] 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.
- [91] G. Bester, S. Nair, and A. Zunger. *Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$ quantum dots. Phys. Rev. B*, 67 :161306, 2003.
- [92] L. C. Andreani, F. Bassani, and A. Quattropani. *Longitudinal-transverse splitting in Wannier excitons and polariton states. Nuovo Cimento D*, 10 :1473, 1988.
- [93] 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.
- [94] B. D. Gerardot, I. Shtrichman, D. Heberta, and P. M. Petroff. *Tuning of the electronic levels in vertically stacked $InAs/GaAs$ quantum dots using crystal growth kinetics. J. Cryst. Growth*, 44 :252, 2003.
- [95] M. A. Migliorato, D. Powell, E. A. Zibik, L. R. Wilson, M. Fearn, J. H. Jefferson, M. J. Steer, 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.
- [96] 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.
- [97] G. Bester and A. 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.

- [98] 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.
- [99] P. Yu, W. Langbein, K. Leosson, J. M. Hvam, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, A. F. Tsatsul'nikov, , and Yu. G. Musikhin. *Optical anisotropy in vertically coupled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 60 :016680, 1999.
- [100] M. Henini, S. Sanguinetti, S. C. Fortina, E. Grilli, M. Guzzi, G. Panzarini, L. C. Andreani, M. D. Upward, P. Moriarty, P. H. Beton, and L. Eaves. *Optical anisotropy in arrow-shaped InAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 57 :R6815, 1998.
- [101] I. Favero, G. Cassabois, A. Jankovic, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, 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.
- [102] 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.
- [103] U. Bockelmann and G. Bastard. *Interband absorption in quantum wires. I. Zero-magnetic-field case*. *Phys. Rev. B*, 45 :1688, 1992.
- [104] D. N. Krizhanovskii, A. Ebbens, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson. *Individual neutral and charged In_xGa_{1-x}As-GaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy*. *Phys. Rev. B*, 72 :161312, 2005.
- [105] Y. Chye, M. E. White, E. Johnston-Halperin, B. D. Gerardot, D. D. Awschalom, and P. M. Petroff. *Spin injection from (Ga,Mn)As into InAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 66 :201301, 2002.
- [106] C. E. Pryor and M. E. Flatté. *Accuracy of circular polarization as a measure of spin polarization in quantum dot qubits*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :257901, 2003.
- [107] A. Scirè, J. Mulet, C. R. Mirasso, J. Danckaert, and M. San Miguel. *Polarization message encoding through vectorial chaos synchronization in vertical-cavity surface-emitting lasers*. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :113901, 2003.
- [108] 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.
- [109] 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.

- [110] 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.
- [111] M. Sénès, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, J. Tribollet, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamorro, and J.-M. Gérard. *Exciton spin manipulation in InAs/GaAs quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects*. *Phys. Rev. B*, 71 :115334, 2005.
- [112] 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.
- [113] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz, and H. Kalt. *Temperature dependence of polarization relaxation in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 66 :161405, 2002.
- [114] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz, and H. Kalt. *Exciton spin relaxation in single semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 67 :205330, 2003.
- [115] S. I. Erlingsson, Y. V. Nazarov, and V. I. Fal'ko. *Nucleus-mediated spin-flip transitions in GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 64 :195306, 2001.
- [116] 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.
- [117] T. H. Stievater, X. Li, T. Cubel, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, and D. Park. *Measurement of relaxation between polarization eigenstates in single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 81 :4251, 2002.
- [118] O. Labeau, P. Tamarat, and B. Lounis. *Temperature dependence of the luminescence lifetime of single CdSe/ZnS quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :257404, 2003.
- [119] 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.
- [120] Y. El Khalifi, B. Gil, H. Mathieu, T. Fukunaga, and H. Nakashima. *Dependence of the light-hole-heavy-hole splitting on layer thickness and substrate orientation in GaAs-(GaAl) As single quantum wells*. *Phys. Rev. B*, 39 :13533, 1989.
- [121] T. Tanaka, J. Singh, Y. Arakawa, and P. Bhattacharya. *Near band edge polarization dependence as a probe of structural symmetry in GaAs/AlGaAs quantum dot structures*. *Appl. Phys. Lett.*, 62 :756, 1993.
- [122] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter, and J. J. Finley. *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots*. *Nature*, 432 :81, 2004.

- [123] L. Besombes, Y. Léger, L. Maingault, D. Ferrand, H. Mariette, and J. Cibert. *Probing the spin state of a single magnetic ion in an individual quantum dot*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :207403, 2004.