



Contrôle optique de l'exciton dans des boîtes quantiques individuelles

Claire-Marie Simon

► To cite this version:

Claire-Marie Simon. Contrôle optique de l'exciton dans des boîtes quantiques individuelles. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2010. Français. NNT : . tel-00707530

HAL Id: tel-00707530

<https://theses.hal.science/tel-00707530>

Submitted on 12 Jun 2012

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

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



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse III - INSA

Discipline ou spécialité : Nanophysique

Présentée et soutenue par Claire-Marie Simon

Le 06 juillet 2010

Titre :

Contrôle optique
de l'exciton dans des boîtes quantiques individuelles.

JURY

Manuel Joffre	(rapporteur)
Guillaume Cassabois	(rapporteur)
Maria Chamarro	
Isabelle Robert	
Christoph Meier	
Béatrice Chatel	
Thierry Amand	
Pierre Renucci	

Ecole doctorale : Ecole doctorale des Sciences de la matière

Unité de recherche : Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité UMR 5589

Laboratoire de Physique et de Chimie des Nano-Objets UMR 5215

Directeur(s) de Thèse : Béatrice Chatel

Thierry Amand-Pierre Renucci

Résumé de Thèse

Spécialité : Nanophysique

Nom : SIMON

Prénom : Claire-Marie

Titre de la thèse en français : Contrôle optique de l'exciton dans des boîtes quantiques individuelles

Soutenue le : 6 juillet 2010

Numéro d'ordre : 1033

Nombre de pages : 250

Jury : M.JOFFRE, G.CASSABOIS, M.CHAMARRO, I.ROBERT, C.MEIER, B.CHATEL, T.AMAND, P.RENUCCI

Thèse effectuée au : Laboratoire de Physique et Chimie des Nano-Objets de l'Institut National des Sciences Appliquées et Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité.

RÉSUMÉ DE LA THÈSE EN FRANÇAIS :

Les boîtes quantiques semiconductrices de type *InAs/GaAs* ont des propriétés électroniques et optiques qui les rapprochent de l'atome unique. C'est dans ce contexte que se situe ce travail de thèse, qui s'intéresse à différents aspects de l'interaction lumière-matière dans ce type de système.

Nous avons d'abord étudié le système couplé constitué du spin de l'électron et des spins nucléaires dans une boîte quantique unique, sous excitation non résonante. Pour ces expériences, nous avons utilisé des techniques de photoluminescence stationnaire résolues en polarisation : nous présentons des mesures complètes d'excitation de la photoluminescence, dans différentes conditions expérimentales. L'état de charge des boîtes quantiques fluctuant dans le temps d'une part et le couplage entre les spins nucléaires et le spin de l'électron via l'interaction hyperfine d'autre part sont à la base d'un effet original : il est possible de modifier *optiquement* les états propres de l'exciton neutre en l'absence de champ magnétique externe. Nos résultats expérimentaux sont confirmés par une spectroscopie de plus haute résolution, qui utilise un interféromètre de Fabry-Pérot placé en amont de la chaîne de détection.

Nous présentons ensuite des expériences réalisées en régime cohérent, c'est-à-dire dans un temps plus court que le temps de déphasage du système, dans des échantillons à charge ajustable. Nous avons excité la boîte quantique à résonance (sur son état fondamental) avec des impulsions courtes (durée $\sim 1\text{ps}$) limitées par la transformée de Fourier). En s'appuyant sur un schéma de détection original, nous détectons le signal de luminescence sur un état spectateur situé à quelques meV de la transition excitée. Ceci nous a permis de mettre en évidence les oscillations de Rabi de l'exciton dans une boîte quantique unique. Ensuite, en utilisant des impulsions à dérive de fréquence, nous montrons qu'il est possible de générer une population d'exciton de façon à la fois fidèle et *robuste*, en réalisant *un passage adiabatique rapide*. Ce résultat expérimental est une première étape en vue de l'implémentation puis de la manipulation d'un Q-bit dans une boîte quantique unique.

MOTS-CLÉS : Spintronique, Interaction hyperfine, Spectroscopie de photoluminescence d'objet unique, boîte quantique semiconductrice, Impulsions à dérive de fréquence, Passage adiabatique rapide...

Titre de la thèse en anglais :

Optical control of the exciton in a single quantum dot

RÉSUMÉ DE LA THÈSE EN ANGLAIS :

Semiconductor quantum dots *InAs/GaAs* exhibit optical and electronic properties for which they are often compared to an individual atom. This thesis work focuses on different aspect of light-matter interaction in a single semiconductor quantum dot.

The coupled system constituted by the electron spin and the nuclei spins have been studied in a single quantum dot. Photoluminescence experiments resolved in polarization have been carried out, with non resonant optical pumping : comprehensive studies in photoluminescence excitation under various experimental conditions (excitation power and polarization) have been performed. They point out the quantum dots fluctuating charge state and the strong coupling between the electron spin and the nuclear spins via hyperfine interaction. This enables the *optical* neutral exciton eigenstates orientation without any external magnetic field. We have confirmed these experimental results using a Fabry-Perot interferometer in order to increase the spectral resolution of our microphotoluminescence set up.

In a second step, we present experiments performed in the coherent regime, in a time scale shorter than the system dephasing time, in a sample where the quantum dots are embedded in a Schottky-diode structure. The quantum dot is excited resonantly with short pulses (Fourier transform limited) and, using an original detection scheme, we detect the luminescence signal on a spectator state. We demonstrate the Rabi oscillations of the exciton state in a single quantum dot. Finally, using frequency swept chirped pulses, we show that it is possible to prepare robustly and with a strong fidelity an exciton state in a single quantum dot. This is a first step toward the Q-bit implementation and manipulation in a single quantum dot.

Table des matières

Introduction	1
1 Introduction aux propriétés électroniques et optiques des structures semiconductrices III-V	5
1.1 Du semiconducteur massif aux boîtes quantiques	8
1.1.1 Etats électroniques et structure de bandes du semiconducteur massif	8
1.1.2 Notion d'exciton dans le matériau massif	14
1.2 Les hétérostructures semiconductrices	17
1.2.1 Les puits quantiques	20
1.2.2 Les boîtes quantiques	23
1.2.2.1 Méthodes de croissance	24
1.2.2.2 Intérêt et applications des boîtes quantiques	26
1.2.2.3 Etats électroniques et structure fine excitonique dans une boîte quantique	27
Remarque	31
1.3 Le pompage optique orienté	37
1.3.1 Structures 3D	37
1.3.2 Structures 2D et 0D	41
1.4 Les principaux mécanismes de relaxation de spin	43
1.4.1 Les mécanismes de relaxation du massif	44
1.4.1.1 Le mécanisme d'Elliott-Yafet	44
1.4.1.2 Le mécanisme de D'Yakonov-Perel	45
1.4.1.3 Le mécanisme Bir-Aronov-Pikus	46
1.4.1.4 Conclusion	46
1.4.2 Les mécanismes de relaxation dans les boîtes quantiques	47

2	Présentation des dispositifs expérimentaux	51
2.1	Les études hors résonance	54
2.1.1	Le microscope confocal	54
2.1.2	Les sources d'excitation	59
2.1.2.1	L'oscillateur Ti :Sa	59
2.1.2.2	Le laser Ti :Sa continu	59
2.1.2.3	La diode à cavité étendue	60
2.1.3	L'interféromètre de Fabry-Pérot	61
2.1.3.1	Quelques relations utiles	62
2.1.3.2	Définition des grandeurs caractéristiques de l'inter- féromètre de Fabry-Pérot	65
2.1.3.3	Mesure expérimentale des grandeurs caractéristiques de l'interféromètre de Fabry-Pérot	68
2.2	Vers une excitation résonante...	78
2.2.1	Une nouvelle tête de microscope pour une excitation résonante	79
2.2.2	Les outils de façonnage d'impulsions	90
2.2.2.1	La ligne à dispersion nulle	90
2.2.2.2	L'étireur à réseaux	93
3	Conversion linéaire-circulaire des états propres de boîte quantique pilotée par la lumière	95
3.1	L'interaction hyperfine	98
3.1.1	Le système électron-noyau	99
3.1.1.1	Le terme dipolaire de l'hamiltonien hyperfin	101
3.1.1.2	Le terme de contact de Fermi	102
3.1.2	Les spins nucléaires	106
3.1.2.1	Couplage dipolaire entre noyaux	106
3.1.2.2	Les effets quadrupolaires	107
3.2	Description des expériences	110
3.2.1	Présentation des échantillons étudiés	110
3.2.2	Identification des raies	112
3.2.3	Spectroscopie d'excitation de la photoluminescence	118
3.3	Présentation des résultats obtenus sur chaque complexe excitonique et interprétation	120
3.3.1	Le trion	121
3.3.2	L'exciton neutre	133

3.3.3	Le bi-exciton	148
3.4	Mise en évidence expérimentale de la structure fine des différents complexes excitoniques	151
3.4.1	Le cas du trion	152
3.4.2	Le cas de l'exciton neutre	153
3.4.3	Le cas du bi-exciton	156
4	Manipulations cohérentes sur boîte quantique unique : Mise en évidence des oscillations de Rabi et Passage adiabatique	159
4.1	Etude théorique du passage adiabatique rapide et des oscillations de Rabi	162
4.1.1	Etat de l'art	162
4.1.2	Etude théorique	164
4.2	Mise en oeuvre expérimentale	179
4.2.1	Les outils expérimentaux	180
4.2.1.1	L'échantillon	180
4.2.1.2	Un schéma de détection original	184
4.2.2	Limites expérimentales et modélisation	189
4.2.2.1	Mise en évidence des états propres de l'exciton neutre par spectroscopie d'absorption	189
4.2.2.2	Simulations d'un système à quatre niveaux	192
4.2.2.3	Discussion sur le spectre	198
4.3	Résultats expérimentaux : des oscillations de Rabi au passage adiabatique rapide	201
4.3.1	Protocole expérimental	201
4.3.2	Présentation des résultats expérimentaux	204
4.3.2.1	Mise en évidence expérimentale des oscillations de Rabi et du passage adiabatique rapide de l'exciton	204
4.3.2.2	Etude avec la ligne 4f	206
4.3.2.3	Etude de la dérive de fréquence	207
4.3.3	Interprétations à l'aide des simulations numériques	208
4.3.3.1	Influence du nombre d'onde central σ de l'impulsion	210
4.3.3.2	Influence de la dérive de fréquence de l'impulsion	212
4.3.3.3	Pistes d'interprétations	213
4.4	Conclusion et perspectives	214

Conclusion	217
Annexes	219
A Propagation dans un milieu dispersif	219
A.1 Etude de la traversée d'un milieu optique dispersif par une impulsion ultracourte	220
A.2 Notations du chapitre 4	222
A.2.1 Cas d'une impulsion limitée TF	223
A.2.2 Cas d'une impulsion à dérive de fréquence	223
B Procédure de fit : Mesure indirecte du déplacement Overhauser de l'exciton neutre	225
C Formalisme de pseudo-spin effectif : visualisation intuitive des os- cillations de Rabi et du passage adiabatique rapide	231

Introduction

Les boîtes quantiques semiconductrices, nanocristaux dont la taille est de l'ordre de 10-20 nm, ont des propriétés électroniques qui les rapprochent des atomes individuels [1], en particulier un spectre discret des niveaux d'énergie [2]. L'interaction de ces systèmes avec le rayonnement conduit à la formation d'excitons, paires électrons-trous en interaction coulombienne, et éventuellement de bi-excitons (paires d'excitons) ou d'excitons chargés.

Parallèlement, des expériences de manipulations cohérentes de la matière par la lumière ont été réalisées dans le domaine de la physique atomique et moléculaire au cours des deux dernières décennies [3]. L'idée est de contrôler l'évolution d'un système quantique par le biais de son interaction cohérente avec une ou plusieurs impulsions lumineuses. Pour cela, de nombreux schémas de contrôle peuvent être utilisés. Ils reposent sur des phénomènes d'interférences quantiques que l'on peut influencer à l'aide d'un petit nombre de paramètres, comme le retard ou la phase entre deux impulsions excitatrices.

Ces expériences restent cependant très délicates en physique de la matière condensée, où les temps de cohérence sont extrêmement courts (de l'ordre de quelques picosecondes à 10K). Toutefois, des résultats probants ont été obtenus à la fois dans les semiconducteurs massifs [4] et dans les puits quantiques [5, 6, 7].

Dans la perspective d'applications futures dans le domaine du traitement de l'information quantique, trois atouts font des boîtes quantiques auto-organisées des systèmes en phase condensée propices à la réalisation de manipulations cohérentes :

- (i) La transition depuis l'état fondamental vers un état d'exciton présente une force d'oscillateur relativement importante, renforcée par l'effet de taille [8, 1].
- (ii) Du fait de la limitation des processus de diffusion élastique ou inélastique, les mécanismes de décohérence sont relativement inefficaces par rapport au semiconducteur massif ou aux puits quantiques, ce qui conduit à des temps de déphasage limités par le temps de vie à basse température [9].
- (iii) Les mécanismes de relaxation de spin (entre deux modes excitoniques distincts) sont inhibés à l'échelle du temps de vie de l'électron dans la boîte quantique [10].

Le but de ce travail est de transposer les bases expérimentales et conceptuelles des expériences de manipulations cohérentes de la physique atomique sur un système en phase condensée : la boîte quantique semiconductrice unique.

Ce projet de thèse met en commun les compétences complémentaires de deux équipes appartenant à deux laboratoires distincts : l'équipe Femto du LCAR dans le domaine de l'interaction cohérente lumière-matière dans des systèmes atomiques et moléculaires et l'équipe Optoélectronique Quantique du LPCNO dans le domaine de la dynamique des excitations élémentaires et de la dynamique de spin des nanostructures semiconductrices.

Ce mémoire est organisé de la façon suivante :

- Dans le chapitre 1, nous poserons les bases théoriques nécessaires à la compréhension des expériences. Nous décrirons les états électroniques des structures semiconductrices de type III-V, ainsi que les principaux effets liés au pompage optique orienté, allant du massif aux structures de plus basse dimensionnalité (puits quantiques, boîtes quantiques). Nous présenterons également les différents mécanismes de relaxation qui interviennent dans ces structures, en mettant en avant les particularités des boîtes quantiques semiconductrices en comparaison du semiconducteur massif ou des puits quantiques.
- Le chapitre 2 est consacré aux différents dispositifs expérimentaux utilisés au cours de cette thèse. Nous présenterons un premier dispositif de photoluminescence sur boîte quantique unique permettant de réaliser des études en excitant la boîte quantique de façon non résonante, avec un contrôle de l'état de polarisation du laser à l'excitation et sur le signal détecté. Ceci permet entre autres d'étudier les effets nucléaires. Nous décrirons ensuite les différents outils expérimentaux mis en place afin d'exciter et de détecter le signal de photoluminescence en excitant sur le niveau fondamental de la boîte quantique. L'optimisation de la réjection du signal de réflexion et de diffusion parasite du laser d'excitation a conditionné le succès des manipulations cohérentes du chapitre 4.
- Les expériences décrites dans le chapitre 3 sont réalisées en excitant la boîte quantique hors résonance. Des études complètes d'excitation de la photoluminescence résolues en polarisation, ainsi que des études en puissance seront présentées. Elles mettent en évidence l'importance de l'environnement sur l'électron dans la boîte quantique, illustrant ainsi une des limites de l'analogie qui est souvent faite entre boîte quantique et atome unique. L'électron est en effet sensible aux fluctuations de charge de la boîte et il interagit avec les noyaux qui l'entourent par le biais de l'interaction hyperfine. Cela joue un rôle important dans les phénomènes physiques que nous mettrons en évidence.

- Enfin, dans le chapitre 4, nous présenterons des expériences réalisées en régime cohérent, c'est-à-dire avec des impulsions plus courtes que le temps de déphasage du système, en excitant la boîte quantique de façon résonante. A l'aide d'un schéma de détection original, qui utilise le trion comme état spectateur, nous mettrons en évidence les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique rapide de l'exciton dans une boîte quantique unique. Ces expériences montrent qu'il est possible de préparer un état quantique donné de façon robuste.

Chapitre 1

Introduction aux propriétés électroniques et optiques des structures semiconductrices III-V

Sommaire

1.1	Du semiconducteur massif aux boîtes quantiques	8
1.1.1	Etats électroniques et structure de bandes du semiconducteur massif	8
1.1.2	Notion d'exciton dans le matériau massif	14
1.2	Les hétérostructures semiconductrices	17
1.2.1	Les puits quantiques	20
1.2.2	Les boîtes quantiques	23
1.3	Le pompage optique orienté	37
1.3.1	Structures 3D	37
1.3.2	Structures 2D et 0D	41
1.4	Les principaux mécanismes de relaxation de spin	43
1.4.1	Les mécanismes de relaxation du massif	44
1.4.2	Les mécanismes de relaxation dans les boîtes quantiques	47

Ce chapitre est une introduction à la physique des structures semiconductrices de différentes dimensionalités.

Dans une première partie, nous présentons les propriétés électroniques au centre de la zone de Brillouin des semiconducteurs massifs, des puits quantiques et des boîtes quantiques auto-organisées.

Nous détaillons ensuite le principe du pompage optique orienté qui découle de l'interaction de ces systèmes avec une onde électromagnétique. Les règles de sélection optique permettent de relier la polarisation de la lumière à la polarisation de spin des porteurs photogénérés. Elles peuvent être mises à profit pour l'étude de la dynamique de spin des porteurs dans les expériences de spectroscopie de photoluminescence.

Enfin, nous évoquons les principaux mécanismes de relaxation de spin qui interviennent dans les structures semiconductrices.

1.1 Du semiconducteur massif aux boîtes quantiques : propriétés électroniques

1.1.1 Etats électroniques et structure de bandes du semiconducteur massif

Dans un matériau semiconducteur massif, les porteurs sont libres de se mouvoir selon les trois directions de l'espace. Les états d'énergie qui leur sont accessibles sont distribués selon des bandes d'énergie dont la structure exacte est déterminée par le potentiel cristallin et ses symétries. La description des propriétés optiques des semiconducteurs à gap direct nécessite essentiellement la connaissance des états électroniques au voisinage du centre de la zone de Brillouin.

La structure de bande des matériaux semiconducteurs massifs cristallisant dans la structure Blende de Zinc (de type *GaAs* ou *InAs*) est schématisée sur la Figure 1.1.

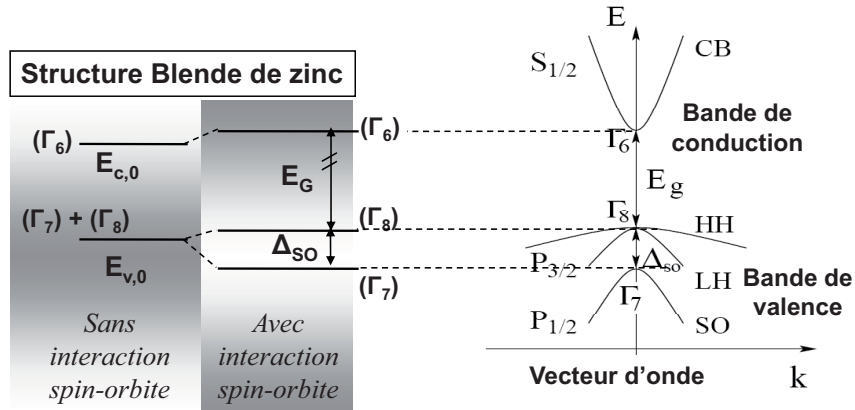


FIGURE 1.1 – Représentation schématique de la structure de bandes d'un semiconducteur cristallisant dans la structure Blende de Zinc.

Les états de la bande de conduction trouvent leur origine dans les liaisons chimiques anti-liantes de type s du réseau cristallin, tandis que les états de la bande de valence proviennent des liaisons liantes de type p.

En utilisant les notations de physique atomique pour les orbitales atomiques, les états de conduction en $\vec{k} = \vec{0}$ sont décrits dans une base $\{|S, \uparrow\rangle, |S, \downarrow\rangle\}$. De même, les états de valence en $\vec{k} = \vec{0}$ sont décrits dans la base $\{|X, \uparrow\rangle, |X, \downarrow\rangle, |Y, \uparrow\rangle, |Y, \downarrow\rangle, |Z, \uparrow\rangle, |Z, \downarrow\rangle\}$, où $\uparrow$ et $\downarrow$ représentent le moment cinétique de spin.

Afin de calculer la structure de bande électronique du semiconducteur massif, il nous faut résoudre l'équation de Schrödinger pour un électron dans le potentiel cristallin :

$$H_o \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = \left(\frac{-\hbar^2}{2m_0} \Delta_{\vec{r}} + V(\vec{r}) \right) \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}} \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.1)$$

où $V(\vec{r})$ est le potentiel périodique du cristal, m_0 la masse de l'électron dans le vide.

La fonction d'onde s'exprime, d'après le théorème de Bloch, résultant de l'invariance par translation du cristal semiconducteur [11] :

$$\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} u_{n,\vec{k}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (1.2)$$

V représente le volume du cristal, $\vec{k}$ est un vecteur d'onde de l'espace réciproque, et n désigne l'indice de bande.

Les fonctions $u_{n,\vec{k}}$ sont des fonctions périodiques du réseau dans l'espace réel qui contiennent l'information sur la nature et l'arrangement des éléments chimiques du cristal. En $\vec{k}=\vec{0}$, elles se transforment comme les orbitales atomiques pour les opérations de symétrie du groupe T_d . C'est pourquoi un parallèle avec la nomenclature de la physique atomique pour les orbitales atomiques est utilisé pour décrire les états de valence et de conduction (pour les bandes les plus proches du gap).

A ce stade, la résolution de l'équation 1.1 permet d'obtenir en centre de zone ($\vec{k} = \vec{0}$) les énergies correspondant aux extrema des bandes d'énergie. La première énergie est notée $E_{c,0}$ et correspond à l'énergie de la bande de conduction. Au centre de la zone de Brillouin en $\vec{k}=\vec{0}$, la bande de conduction (BC) est séparée de la bande de valence (BV) par la bande interdite de largeur E_G .

Pour décrire de façon plus complète la structure de bandes du semiconducteur, il faut tenir compte de l'interaction spin-orbite. Le moment cinétique orbital et le moment cinétique de spin ne sont plus traités séparément car le mouvement de l'électron et son spin sont couplés : l'opérateur de spin ne commute plus avec l'hamiltonien total ($H_o + W_{so}$).

Il est alors commode d'utiliser la base $|J^2, J_z\rangle$ pour décrire les états en $\vec{k} = \vec{0}$. J représente le moment cinétique total (moment cinétique L + moment cinétique de spin S), et J_z sa projection sur l'axe de quantification, choisi ici selon l'axe de croissance des échantillons (Oz).

L'hamiltonien total du système H s'écrit :

$$H = H_o + W_{so} = H_o + \frac{\hbar}{4m_0^2c^2} \mathbf{K} \cdot \hat{\sigma} \quad (1.3)$$

c est la célérité de la lumière dans le vide, σ les matrices de Pauli et $\mathbf{K} = \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} \mathbf{L}$ (en symétrie sphérique).

Nous pouvons définir le paramètre d'interaction spin-orbite Δ_{SO} , grâce à l'opérateur $\mathbf{K}$ de la façon suivante :

$$\Delta_{SO} = i \frac{3\hbar}{4m_0^2c^2} \langle X | K_z | Y \rangle \quad (1.4)$$

Le couplage spin-orbite laisse les états de conduction inchangés en $\vec{k}=\vec{0}$ et lève partiellement la dégénérescence des états de valence.

La bande de valence se compose d'une bande de trous lourds (HH) et d'une bande de trous légers (LH), toutes deux dégénérées en centre de zone, et d'une bande clivée par l'interaction spin-orbite. Cette dernière est située à une énergie plus faible, qui est donnée par l'énergie de couplage spin-orbite Δ_{SO} .

Ordres de grandeur : dans $GaAs$, $\Delta_{SO} = 350 \text{ meV}$ et dans $InAs$, $\Delta_{SO} = 380 \text{ meV}$ [12]. Le couplage spin-orbite est significatif pour les semiconducteurs de numéro atomique élevé.

Afin de trouver les fonctions propres u_n et les énergies propres du système, nous pouvons maintenant écrire l'hamiltonien H sous forme matricielle dans la base :

$$B = \{|S \uparrow\rangle, |S \downarrow\rangle, |X \uparrow\rangle, |Y \uparrow\rangle, |Z \downarrow\rangle, |X \downarrow\rangle, |Y \downarrow\rangle, |Z \uparrow\rangle\}$$

Les expressions des fonctions u_n qui décrivent les états aux extrema des bandes de conduction et de valence d'un semiconducteur cristallisant dans la structure Blende de Zinc en $\vec{k} = \vec{0}$ sont reportées dans le Tableau 1.1.

- La première colonne comporte les expressions des fonctions u_n à partir des états de base $\{|S, \sigma\rangle, |X, \sigma\rangle, |Y, \sigma\rangle, |Z, \sigma\rangle\}$ (où $\sigma = \uparrow$ ou $\downarrow$).
- La deuxième colonne comporte la notation atomique $|J^2, J_z\rangle$ de ces mêmes fonctions.

Plus de détails sur la structure de bande peuvent être trouvés dans la référence [13] et les références incluses.

Fonctions propres u_i	Notations "atomiques"	Energies propres
$u_1 = S, \uparrow\rangle$ $u_2 = S, \downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_{cond} = E_{HH} + E_G$
$u_5 = \frac{1}{\sqrt{2}} (X + iY), \uparrow\rangle$ $u_6 = \frac{1}{\sqrt{2}} (X - iY), \downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$ $ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	E_{HH}
$u_3 = \frac{1}{\sqrt{6}} (X + iY), \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \uparrow\rangle$ $u_4 = -\frac{1}{\sqrt{6}} (X - iY), \uparrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_{LH} = E_{HH}$
$u_7 = \frac{1}{\sqrt{3}} (X + iY), \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} Z, \uparrow\rangle$ $u_8 = -\frac{1}{\sqrt{3}} (X - iY), \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} Z, \downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_{SO} = E_{HH} - \Delta_{SO}$

TABLE 1.1 – *Partie périodique des fonctions de Bloch des extrema des bandes de conduction et de valence en $\vec{k}=0$ pour un cristal de symétrie blende de zinc. Le sous-espace (u_1, u_2) est associé aux électrons de conduction, alors que les sous-espaces (u_3, u_4) , (u_5, u_6) et (u_7, u_8) sont respectivement associés aux trous lourds, aux trous légers et aux trous de la bande de split-off.*

Grâce à la levée de dégénérescence des bandes Γ_7 et Γ_8 , on pourra sélectionner en énergie uniquement les transitions optiques faisant intervenir les états de trous lourds et de trous légers. Nous verrons alors qu'en utilisant une lumière polarisée de façon adéquate, nous pourrions polariser en spin les porteurs photocréés. Nous détaillons ce point dans le paragraphe 1.3.

D'autre part, l'absence de centre d'inversion dans les composés III-V autorise certains couplages entre les bandes de valence et les bandes de conduction de plus haute énergie. Cela introduit un terme supplémentaire dans la dispersion de la bande de conduction (*Terme de Dresselhaus*) qui lève la dégénérescence de spin des états de conduction d'autant plus que l'on s'écarte du centre de la première zone de Brillouin. Ce "spin-splitting" sera à l'origine d'un mécanisme de relaxation de spin de l'électron (*D'Yakonov Perel*), que nous aborderons dans le paragraphe 1.4.

Eléments de théorie $\vec{k}.\vec{p}$

Pour calculer la structure de bandes en $\vec{k} \neq \vec{0}$, nous pouvons utiliser la méthode $\vec{k}.\vec{p}$. Il s'agit d'une technique de calcul semi-empirique qui introduit, dans le calcul théorique, des valeurs pouvant provenir de l'expérience.

L'équation de Schrödinger peut être écrite en fonction de la partie périodique des fonctions de Bloch $u_{n,\vec{k}}$ de la façon suivante :

$$\left(\frac{-\hbar^2}{2m_0} \Delta_{\mathbf{r}} + \frac{\hbar \vec{k}.\vec{p}}{m_0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V(\mathbf{r}) \right) u_{n,k}(\mathbf{r}) = E_{n,\vec{k}} u_{n,k}(\mathbf{r}) \quad (1.5)$$

On suppose connues les valeurs $E_{n,0}$. L'opérateur $\frac{\hbar \vec{k}.\vec{p}}{m}$ est traité comme une perturbation en considérant les petites valeurs de $\vec{k}$ proches du centre de zone. Nous obtenons :

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \hbar^2 \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n, 0 | \frac{\vec{k}.\vec{p}}{m_0} | n', 0 \rangle \langle n', 0 | \frac{\vec{k}.\vec{p}}{m_0} | n, 0 \rangle}{E_{n,0} - E_{n',0}} \quad (1.6)$$

Cette équation montre qu'en première approximation, on peut considérer l'évolution de $E_{n,\vec{k}}$ comme parabolique.

Les éléments théoriques présentés jusqu'ici ne s'appliquent qu'à une bande d'énergie unique et non dégénérée. La bande de valence sera correctement décrite grâce à un hamiltonien plus complexe, qui utilise des considérations de théorie des groupes permettant de prendre en compte les symétries du cristal [11].

Cet hamiltonien dépend des paramètres γ_1 , γ_2 et γ_3 appelés *paramètres de Kohn-Luttinger*. Il s'écrit de manière générale dans la base des états de trous lourds et de trous légers :

$$H_L = -\frac{\hbar^2}{2m_0} \left[(\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2) \nabla^2 - 2\gamma_2 (\nabla \cdot \mathbf{J})^2 + 2(\gamma_3 - \gamma_2) (\nabla_x^2 \mathbf{J}_x^2 + p.c.) \right] \quad (1.7)$$

p.c. désigne la permutation circulaire et $\mathbf{J} = (J_x, J_y, J_z)$ est l'opérateur moment angulaire total.

En diagonalisant cet hamiltonien, on obtient deux énergies propres doublement dégénérées :

$$E = E_{v,0} + \frac{\hbar^2}{2m_0} \left[(1 - \gamma_1)k^2 \pm \sqrt{4\gamma_2^2 k^4 + 12(\gamma_3^2 - \gamma_2^2)/(k_x^2 k_y^2 + k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2)} \right]$$

La contribution positive correspond à l'évolution de la bande des trous lourds et la contribution négative à celle de la bande des trous légers.

Il est intéressant de donner ici la relation qui existe entre les masses effectives des trous lourds et des trous légers, et les paramètres de Kohn-Luttinger¹ dans les directions (100) et équivalentes (avec $\gamma_1, \gamma_2 > 0$) :

$$\frac{m_0}{m_{hh}} = \gamma_1 - 2\gamma_2 \qquad \frac{m_0}{m_{lh}} = \gamma_1 + 2\gamma_2 \quad (1.8)$$

Dans la direction de l'axe de quantification (Oz), la masse effective des trous lourds est supérieure à celle des trous légers, ce qui justifie la courbure des bandes de la Figure 1.1 (et également leur appellation).

De façon générale, la bande de valence d'un matériau semiconducteur de symétrie T_d est décrite correctement grâce à l'hamiltonien 1.7, y compris dans le cas du confinement des trous comme nous le verrons dans le paragraphe 1.2 où nous présentons les hétérostructures semiconductrices.

1. Les paramètres de Kohn-Luttinger valent pour le GaAs : $\gamma_1 = 7.0$, $\gamma_2 = 2.25$ et $\gamma_3 = 2.9$ [11].

1.1.2 Notion d'exciton dans le matériau massif

Dans les semiconducteurs, l'absorption d'un photon d'énergie supérieure ou égale à la largeur de la bande interdite provoque la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. L'électron laisse une place vacante dans la bande de valence, appelée trou, qui se comporte comme un porteur de charge positive, par opposition à l'électron.

L'électron et le trou peuvent se lier par interaction coulombienne pour former un complexe hydrogénoïde : l'*exciton*. Cette interaction sera à l'origine des termes directs et d'échange qui apparaissent entre les états de conduction et les états de valence.

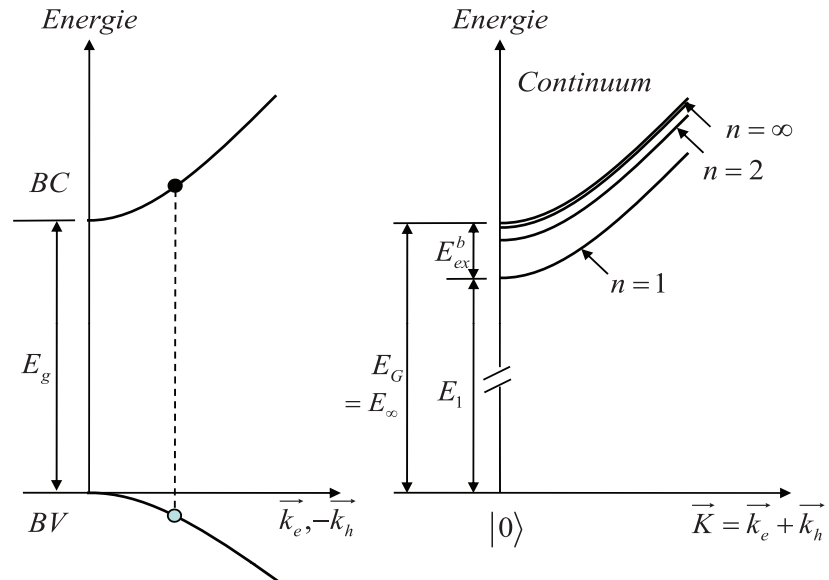


FIGURE 1.2 – Représentation d'une paire électron-trou dans un schéma de structure de bande (a) BV-BC (b) excitonique

La description exacte de l'exciton relève en fait d'un problème à N corps. Le trou n'est en effet qu'une représentation simplifiée des (N-1) électrons indiscernables de la bande de valence en interaction coulombienne avec l'électron de la bande de conduction. Nous donnons ici une description simple des états excitoniques, en gardant la représentation d'un exciton formé de deux particules : l'électron et le trou.

En utilisant l'approximation de la masse effective, le mouvement corrélé de l'électron (de vecteur position $\vec{r}_e$ et de masse m_e) et du trou ($\vec{r}_h$, m_h) peut se décrire en termes de centre de masse ($\vec{R}$, M) et de particule réduite ($\vec{\rho}$, μ). Le changement de variables est alors donné par :

$$\vec{R} = \frac{m_e \vec{r}_e + m_h \vec{r}_h}{M}, \quad M = m_e + m_h, \quad \text{et} \quad \vec{\rho} = \vec{r}_e - \vec{r}_h, \quad \frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$$

$$\text{De plus : } \vec{P} = \vec{p}_e + \vec{p}_h, \quad \text{et} \quad \vec{p} = \mu \dot{\vec{\rho}}$$

La fonction d'onde excitonique pour un semiconducteur massif (3D) dans l'approximation de la fonction enveloppe peut alors s'écrire :

$$\Phi_{ex}(\vec{R}, \vec{\rho}) = \frac{1}{C} u_{c0}(\vec{r}_e) u_{v0}(\vec{r}_h) \phi_{env}(\vec{\rho}) e^{i\vec{K}\vec{R}} \quad (1.9)$$

$\frac{1}{C}$ est un facteur de normalisation, $u_{c0}(\vec{r}_e)$ et $u_{v0}(\vec{r}_h)$ sont respectivement les fonctions de Bloch de l'électron et du trou en $\vec{k}=\vec{0}$, et $\phi_{env}(\vec{\rho})$ est la fonction enveloppe décrivant le mouvement de la particule réduite.

Nous introduirons la fonction enveloppe dans le paragraphe 1.2 qui présente les hétérostructures semiconductrices.

Pour le semiconducteur massif, cette fonction est de type hydrogénoïde 1S à trois dimensions et s'écrit :

$$\phi_{env}(\vec{\rho}) = \frac{1}{\sqrt{\pi a_B^3}} e^{-\frac{|\vec{\rho}|}{a_B}} \quad (1.10)$$

où a_B est le rayon de Bohr de l'exciton.

Les expressions 1.9 et 1.10 signifient que la fonction d'onde de l'exciton est délocalisée sur tout le cristal mais que l'électron et le trou sont séparés l'un de l'autre d'une distance moyenne de l'ordre du rayon de Bohr, qui vaut :

$$a_B = a_0 \epsilon_r \frac{m_0}{\mu} \quad (1.11)$$

où $a_0 = 0.529 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène, ϵ_r la constante diélectrique du matériau, m_0 la masse de l'électron et μ la masse effective réduite. a_B vaut environ $120 \text{ \AA}$ dans *GaAs*.

L'énergie d'un exciton de vecteur d'onde $\vec{K}$ est donnée par :

$$E_{ex}^{3D}(\vec{K}, n) = E_G - E_{ex,n}^b + \frac{\hbar \vec{K}^2}{2M} \quad (1.12)$$

n est le nombre quantique principal de l'exciton. La Figure 1.2 montre que l'énergie de l'état fondamental de l'exciton (état 1S) en $\vec{K}=\vec{0}$ correspond à l'énergie de la bande interdite E_G diminuée de son énergie de liaison, que nous noterons $E_{ex,n}^b$, et qui s'écrit :

$$E_{ex,n}^b = R_y^* \frac{1}{n^2} = 13.6eV \frac{\mu}{m_0} \frac{1}{\epsilon_r^2} \frac{1}{n^2}, \quad (1.13)$$

On considère que l'énergie de liaison de l'exciton s'apparente à une énergie de Rydberg effective modifiée par la masse réduite de l'électron et du trou μ et par ϵ_r .

Les excitons constituent donc des excitations électroniques élémentaires du cristal. Ils induisent d'importants effets sur les propriétés optiques des semiconducteurs. Par exemple, comme nous le verrons dans le chapitre 3, les états d'énergie excitoniques se manifestent sous forme de pics résonants dans les spectres d'excitation de la photoluminescence.

1.2 Les hétérostructures semiconductrices

Les progrès spectaculaires réalisés dans le domaine de la physique des semiconducteurs et de ses applications ont été rendus possibles par une bonne maîtrise des méthodes de croissance. Plusieurs techniques ont été développées à partir des années 1970 conduisant au contrôle ultime du dépôt d'atomes, monocouche par monocouche. Ainsi, on a pu concevoir des structures semiconductrices dont les tailles sont réduites à des dimensions de l'ordre de la longueur d'onde de l'électron dans le milieu (typiquement quelques nanomètres) et dont les compositions peuvent également varier à l'échelle du nanomètre.

Dans ce type de structure, des effets de confinement apparaissent du fait de la discontinuité du potentiel électronique aux interfaces entre deux matériaux d'énergie de bande interdite différente. Les porteurs ne sont plus libres de se mouvoir dans toutes les directions et leurs états d'énergie deviennent quantifiés dans les directions de confinement.

Dans une hétérostructure, l'électron est soumis à un potentiel $V_{hetero}(\vec{r})$ non périodique traduisant l'alternance des matériaux A et B qui la composent. Dans la pratique, ce potentiel peut être remplacé par la somme d'un potentiel périodique associé à un cristal virtuel "moyen", que nous noterons $V_{cristal}(\vec{r})$, et d'un potentiel variable $V_n^h(\vec{r})$, qui définit l'hétérostructure [13]. Ce dernier, également appelé potentiel de confinement, permet de tenir compte des variations d'énergie de bandes entre les différents matériaux semiconducteurs de l'hétérostructure.

L'équation de Schrödinger pour une hétérostructure s'écrit alors :

$$H\Psi_{n,\vec{k}} = \left(\frac{-\hbar^2}{2m_0} \Delta_{\vec{r}} + V_{cristal}(\vec{r}) + V_n^h \right) \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}} \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.14)$$

$\hbar$ est la constante de Planck réduite, m_0 la masse de l'électron dans le vide et n l'indice des bandes considérées.

Nous allons simplifier cette équation en utilisant l'approximation de la fonction enveloppe. Celle-ci consiste à considérer que le potentiel V_h varie lentement par rapport au paramètre de maille. Ceci est légitime sauf aux interfaces entre les deux matériaux, qui sont abruptes. L'approximation de la fonction enveloppe reste toutefois valable pour les hétérostructures, pour deux raisons :

- Aux interfaces, il y a continuité de la fonction enveloppe et de la densité de courant de probabilité de présence, compte tenu de la différence de masse effective des deux matériaux formant l'hétérostructure.
- D'autre part, le très fort confinement nous autorise à négliger la densité de probabilité de présence aux interfaces entre les deux matériaux.

Dans le cadre de l'approximation de la fonction enveloppe, on décrit la fonction d'onde $\Psi_{n,\vec{k}}$ à partir des fonctions de Bloch en $\vec{k}=\vec{0}$, $u_{n,0}(\vec{r})$, moyennées sur l'ensemble de l'hétérostructure. Elles font intervenir des fonctions lentement variables devant le pas du réseau cristallin F_n , appelées *fonctions enveloppe*.

La fonction d'onde $\Psi_{n,k}(\vec{r})$ pour les électrons de conduction s'écrit :

$$\Psi_n(\vec{r}) = F_{n,k}(\vec{r}) u_{n,0}(\vec{r}) \quad (1.15)$$

Nous pouvons à présent obtenir une nouvelle équation de Schrödinger faisant intervenir l'hamiltonien de masse effective $\tilde{H}$. Toutes les variations entre les couches semiconductrices s'expriment alors grâce à la masse effective $m_n(\vec{r})$ des matériaux semiconducteurs massifs qui constituent l'hétérostructure [13, 11]. La fonction d'onde associée est la fonction enveloppe F_n .

L'équation 1.14 devient alors, pour la bande de conduction :

$$\tilde{H}F_{n,k}(\vec{r}) = \left(-\nabla \frac{\hbar^2}{2m_n(\vec{r})} \nabla + V_c^h(\vec{r}) \right) F_{n,k}(\vec{r}) = (E_{n,k} - E_{n,0})F_{n,k}(\vec{r}) \quad (1.16)$$

$m_n(\vec{r})$ est la masse effective qui dépend du matériau semiconducteur et $E_{n,k} - E_{n,0}$ est l'énergie de confinement. L'approximation de la fonction enveloppe revient donc à considérer l'hétérostructure comme un cristal "virtuel", qui aurait les mêmes propriétés de symétrie que le cristal de départ, perturbé par un potentiel considéré comme extérieur V_c^h .

Cette équation est valable uniquement pour une bande simple où la masse effective ne dépend que de $\vec{k}$. Un calcul tenant compte de plusieurs bandes est décrit dans [13] et les références incluses. Il nécessite l'utilisation d'une nouvelle fonction enveloppe, possédant autant de composantes que de bandes considérées.

Nous pouvons maintenant résoudre l'équation 1.16 pour une hétérostructure. Dans cette partie, nous nous intéresserons en particulier aux principales propriétés électroniques des puits quantiques (cas d'un confinement unidimensionnel) et des boîtes quantiques (cas d'un confinement tridimensionnel). Nous présentons sur la Figure 1.3 le schéma de principe de ces structures de basse dimensionnalité :

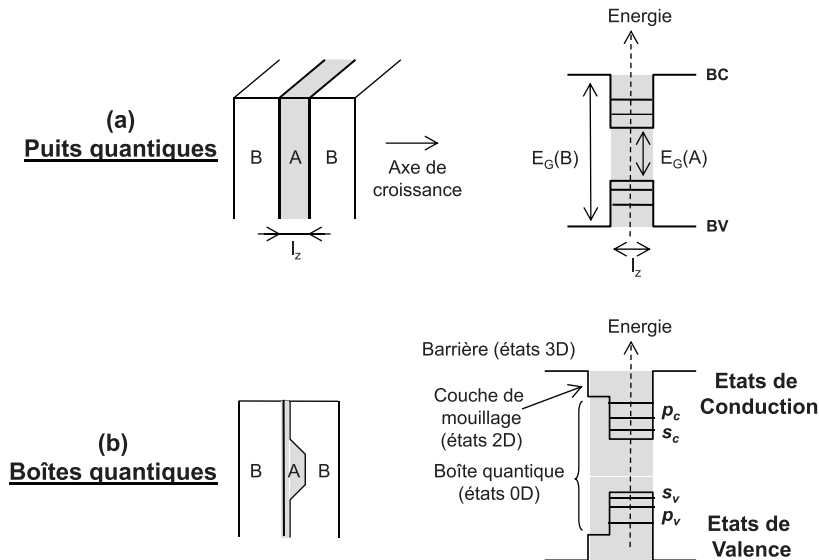


FIGURE 1.3 – Description structurale et schéma de bandes en $\vec{k}=\vec{0}$ (a) d'un puits quantique (b) d'une boîte quantique.

1.2.1 Les puits quantiques

Une structure de puits quantique, schématisée sur la Figure 1.3(a), est obtenue en insérant une fine couche d'un matériau A entre deux couches d'un matériau B de largeur de bande interdite plus importante. Les porteurs restent libres de se mouvoir dans le plan perpendiculaire à l'axe de croissance (Oz) mais il y a quantification des niveaux d'énergie selon la direction de confinement. Dans notre cas, le confinement des électrons, et donc le confinement des états, se fait selon l'axe de croissance (Oz) de l'échantillon.

Pour la suite, nous considérerons que le puits a une largeur L et que l'origine $z=0$ est prise en son centre. La résolution de l'équation de Schrödinger 1.16 se fait classiquement dans la région du puits ($|z| < L/2$), ainsi que dans la région des barrières ($|z| > L/2$).

En raison de la périodicité du potentiel de confinement dans le puits selon les directions x et y , la fonction enveloppe dans le puits quantique peut s'écrire de manière générale :

$$F_n(\mathbf{r}) = \phi(z)e^{i(k_x x + k_y y)}$$

avec k_x, k_y pouvant prendre des valeurs positives ou négatives.

Les fonctions d'onde $\phi(z)$ sont paires ou impaires suivant le niveau d'énergie [11], et décroissent exponentiellement dans les barrières lorsque l'on s'éloigne du puits.

$$\text{Pour } z < -L/2 \quad : \quad \phi(z) = Ae^{\beta z}$$

$$\text{Pour } -L/2 < z < L/2 \quad : \quad \phi(z) = B\cos(\alpha z) \quad \text{ou} \quad \phi(z) = C\sin(\alpha z)$$

$$\text{Pour } z > L/2 \quad : \quad \phi(z) = Ae^{-\beta z}$$

avec A,B,C les constantes de normalisation ainsi que :

$$\alpha = \sqrt{\frac{2m_A}{\hbar^2}(E_n - E_{n,0}) - (k_x^2 + k_y^2)} \tag{1.17}$$

$$\beta = \sqrt{\frac{2m_B}{\hbar^2}(V_0 - E_n + E_{n,0}) - (k_x^2 + k_y^2)} \tag{1.18}$$

Dans l'approximation du puits infini, les valeurs propres associées aux fonctions propres à l'intérieur du puits s'écrivent :

$$E_n(k_x, k_y) = \frac{\hbar^2}{2m_A} \left[\left(\frac{n\pi}{L} \right)^2 + k_x^2 + k_y^2 \right] \quad n = 1, 2, 3... \quad (1.19)$$

Les énergies propres de nombre quantique n pair (impair) auront des fonctions d'ondes impaires (paires). Les niveaux d'énergie sont représentés sur la Figure 1.3(a).

Cette approche simple rend compte correctement des niveaux électroniques dans les puits quantiques. Cependant, elle n'est valable que dans le cas d'une bande simple où la masse effective ne dépend pas de $\vec{k}$, c'est-à-dire dans l'approximation parabolique. Le calcul des fonctions enveloppes des états de valence nécessite un formalisme à plusieurs bandes. L'influence du potentiel coulombien est complexe, même dans l'approximation de la masse effective, et l'équation de Schrödinger pour la fonction enveloppe est difficile à obtenir.

Une approche théorique plus simple consiste à utiliser un hamiltonien dérivé de celui de Kohn-Luttinger comme dans le paragraphe 1.1.1 pour le matériau massif, auquel on ajoute le potentiel de confinement, considéré ici comme carré.

Pour le puits quantique, on peut alors démontrer que l'hamiltonien qui décrit les bandes de valence peut s'écrire [11] :

$$H_{lut} = -\frac{\hbar^2}{2m_0} \left[\left(\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2 \right) - 2\gamma_2 J_z^2 \right] \left(\frac{\partial}{\partial z} \right)^2 + V_0(z) \quad (1.20)$$

γ_1 et γ_2 sont les paramètres de Kohn-Luttinger introduits dans l'équation 1.7 du paragraphe 1.1.1². $V_0(z)$ représente la variation de potentiel pour les trous lorsque l'on passe du matériau A au matériau B.

On constate que, dans cette approximation, les équations sont découplées pour les trous lourds ($j=\frac{3}{2}$) et pour les trous légers ($j=\frac{1}{2}$), comme dans le matériau massif.

2. Dans un souci de simplification, nous ferons l'approximation sphérique, ce qui annule le terme $(\gamma_3 - \gamma_2)$. D'autre part, nous prendrons les mêmes paramètres de Kohn-Luttinger $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ pour le matériau A et le matériau B.

De plus, d'après l'équation 1.19, les niveaux d'énergie accessibles dans la zone confinée sont inversement proportionnels à la masse effective. Dans un puits quantique, à la différence du matériau massif, les bandes de trous lourds et de trous légers, de masses effectives différentes, seront donc séparées en énergie en $\vec{k}=\vec{0}$.

Lorsqu'une contrainte bi-axiale compressive s'applique sur le puits, elle exacerbe cet effet. C'est le cas par exemple de la couche de mouillage dans une boîte quantique élaborée par le mode de croissance de type *Stransky-Krastanov* que nous décrivons dans le paragraphe 1.2.2.1. L'écart entre la bande de trous lourds et la bande de trous légers a été mesuré à environ 30 meV pour un puits quantique contraint d'*InAs/GaAs* de quelques monocouches d'épaisseur [14].

Dans un puits quantique, nous pourrions donc exciter sélectivement la sous-bande de valence de trous lourds avec une lumière polarisée circulairement, ce qui permet de photogénérer une population d'électrons pure en spin. Nous reviendrons sur ce détail important lorsque nous aborderons le pompage optique orienté dans le paragraphe 1.3.

Notion d'exciton 2D La dimensionnalité de la structure joue non seulement sur la densité d'états mais aussi sur l'énergie de liaison des excitons.

Dans le cas d'un exciton bidimensionnel (2D), le mouvement de l'électron et du trou est restreint selon la direction (Oz). Il est décrit à l'aide du formalisme de la fonction enveloppe.

Dans le plan, le mouvement de l'exciton est décrit en séparant le mouvement du centre de masse et celui de la particule réduite. Le mouvement du centre de masse peut être décrit par une onde plane 2D. Celui de la particule réduite est décrit par une fonction d'onde hydrogénoïde 1S à deux dimensions de rayon de Bohr a_{2D} , qui s'écrit :

$$\phi_{env}^{2D}(\vec{\rho}_{\parallel}) = \sqrt{\frac{1}{\pi a_{2D}^2}} \exp\left(-\frac{|\vec{\rho}_{\parallel}|}{a_{2D}}\right), \quad (1.21)$$

où le rayon de Bohr a_{2D} décrit la distance moyenne dans le plan entre l'électron et le trou.

La fonction d'onde excitonique s'écrit alors, dans le cas bi-dimensionnel :

$$\Phi_{ex}(\vec{R}, \vec{\rho}) = \frac{1}{C} u_{c0}(\vec{r}_e) u_{v0}(\vec{r}_h) F_e(z) F_h(z) \phi_{env}^{2D}(\vec{\rho}_{\parallel}) e^{i\vec{K}_{\parallel} \vec{R}} \quad (1.22)$$

où $F_e(z)$ et $F_h(z)$ sont les fonctions enveloppe de l'électron et du trou, $u_{c0}(\vec{r}_e)$ et $u_{v0}(\vec{r}_h)$ leur fonction de Bloch.

On peut calculer simplement la suite des énergies qui correspondent aux états liés, dans le cas bi-dimensionnel :

$$E_b = -\frac{R_{ex}^{3D}}{(n - \frac{1}{2})^2} \text{ avec } n = 1, 2, 3, \dots \quad (1.23)$$

R_{ex}^{3D} est l'énergie de Rydberg excitonique dans le matériau massif.

L'expression 1.23 montre que l'énergie de liaison de l'exciton peut atteindre dans les puits quantiques une valeur quatre fois plus élevée que dans le semiconducteur massif, ce qui favorise la stabilité de l'exciton. Sa force d'oscillateur est également renforcée. La quantification selon l'axe (Oz) augmente en effet le recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou. Ceci accroît leur attraction et réduit le rayon de Bohr a_{2D} , comme le montre le terme $(n - \frac{1}{2})$ de l'équation 1.23.

1.2.2 Les boîtes quantiques

Les boîtes quantiques sont des structures où le confinement se fait dans les trois directions de l'espace, comme cela est schématisé sur la Figure 1.3(b). Dans ce cas, les états d'énergie deviennent discrets, comme dans les systèmes atomiques, de sorte que les boîtes quantiques sont parfois assimilées à des "atomes artificiels". Les boîtes quantiques étudiées dans ce manuscrit sont des nanostructures auto-assemblées lors de la croissance épitaxiale. La méthode de croissance, de type *Stransky-Krastanov*, sera brièvement introduite. La diversité et la richesse des applications des structures de basse dimensionnalité, allant de l'optoélectronique à l'information quantique, justifient aujourd'hui le vif intérêt qu'elles suscitent dans la communauté des chercheurs depuis une vingtaine d'années. C'est pourquoi nous nous y intéresserons ensuite. Enfin, nous introduirons les états électroniques de une à quatre particules dans une boîte quantique.

1.2.2.1 Méthodes de croissance

Différentes techniques d'élaboration existent pour réaliser des boîtes quantiques : par voie chimique, par structuration ou par épitaxie. Nous analysons ici brièvement les différentes étapes qui interviennent lors de l'épitaxie d'un film d'*InAs* sur *GaAs*. Elle se caractérise par deux régimes successifs.

- Le premier est un régime de croissance bi-dimensionnelle qui se traduit par la formation d'une couche d'*InAs* en compression sur le substrat de *GaAs*, appelée *couche de mouillage*. La compression apparaît en raison du désaccord de maille important entre les deux matériaux. Les paramètres de maille de l'arséniure d'indium *InAs* et de l'arséniure de gallium *GaAs* valent en effet respectivement $6.058\text{\AA}$ et $5.653\text{\AA}$ à température ambiante, ce qui représente une différence de paramètre de maille relative de 7%.
- Ensuite, lorsque cette couche bi-dimensionnelle atteint une épaisseur critique (1.8 monocouches pour *InAs* sur *GaAs* [2, 15]), une nouvelle organisation de surface apparaît. La relaxation de la contrainte élastique provoque la formation spontanée d'îlots tri-dimensionnels. Les images AFM et TEM présentées sur la Figure 1.4 illustrent la formation de ces îlots, que l'on nomme généralement *boîtes quantiques*. La fine couche résiduelle d'*InAs* sur laquelle on a fait croître les boîtes s'apparente, quant à elle, à un puits quantique.

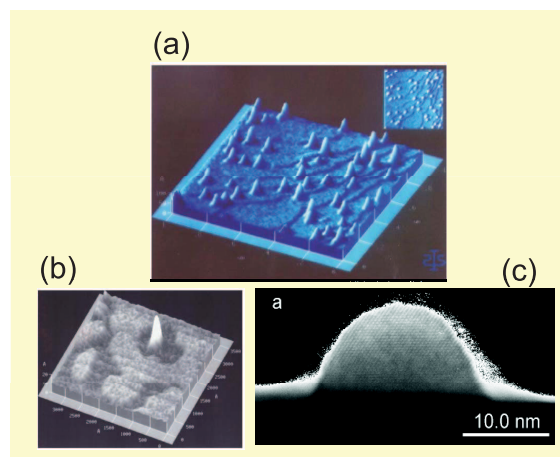


FIGURE 1.4 – (a) et (b) Images obtenues en microscopie à force atomique par J.M.Moison [16](c) Image obtenue en microscopie électronique à transmission (TEM) d'une boîte quantique *InAs*/*GaAs* vue en coupe [17].

Le passage brutal d'une croissance 2D à une croissance 3D est assimilable à une transition de *Stransky-Krastanov* [18]. Cependant, l'épaisseur de la couche 2D initiale diminue localement lors de la formation des îlots.

- Enfin, la dernière étape de l'élaboration consiste à recouvrir l'ensemble de la structure d'une couche de *GaAs* qui permet de figer la taille des îlots et de restaurer la planéité de la surface de l'échantillon. Cette encapsulation dans une matrice de *GaAs* a pour conséquence une modification morphologique :
- Les boîtes enterrées prennent la forme de lentilles très aplaties [19]. Elles ont des dimensions typiques de 2-5 nm selon l'axe de croissance et d'environ 30 nm dans le plan. Ces faibles dimensions, de l'ordre de la longueur d'onde de Broglie de l'électron, justifient l'appellation de boîtes quantiques, dans lesquelles l'électron est confiné dans les trois dimensions de l'espace.
- D'autre part, la composition des boîtes est modifiée : seul le coeur de la boîte demeure pur en *InAs*, la périphérie étant composée d'un alliage ternaire $In_{1-x}Ga_xAs$ en raison de l'interdiffusion du Gallium [20].

Grâce à l'épitaxie à jets moléculaires, il est possible d'élaborer des échantillons de boîtes quantiques dont les densités sont contrôlées en modifiant les paramètres de croissance (flux d'atomes incident sur le substrat, température de croissance, vitesse de croissance...). On peut également ajuster la taille de ces boîtes et leur dopage électronique. En particulier, une densité surfacique très faible, de l'ordre de 5.10^9 cm^{-2} , peut être obtenue dans une région de quelques millimètres de longueur, appelée *zone frontière*.

La Figure 1.4(b) représente une image AFM d'une boîte dans la zone frontière. On remarque que la nucléation de la boîte s'est faite au détriment de la couche de mouillage, qui a disparu à proximité. Ceci illustre en particulier les fluctuations de l'environnement des boîtes, qui sont peut-être plus importantes dans la zone frontière. Les méthodes d'épitaxie à jets moléculaires sont certes maîtrisées à l'heure actuelle, mais elles ne permettent pas un contrôle répétable de l'environnement qui entoure les boîtes. C'est pourquoi les observations réalisées sur boîte quantique unique devront être répétées sur plusieurs boîtes, afin de garantir le résultat.

Les boîtes quantiques peuvent être vues comme des atomes artificiels dont on pourrait modifier la taille et la forme du potentiel de confinement (et donc la structure des niveaux d'énergie) lors du processus d'élaboration.

Les structures à boîtes quantiques auto-organisées se composent donc à la fois d'une matrice 3D (semiconducteur massif), d'une couche de mouillage 2D (puits quantique) et des boîtes elles-mêmes (0D). La connaissance des propriétés optiques et électroniques du semiconducteur massif et du puits quantique est donc nécessaire à la description complète de ces structures de basse dimensionnalité. En particulier, les règles de sélection optique sont modifiées selon que l'on injecte des porteurs en excitant dans les barrières, dans la couche de mouillage, ou directement à résonance avec une transition de boîte quantique.

1.2.2.2 Intérêt et applications des boîtes quantiques

Au-delà de son intérêt pour la physique fondamentale, l'étude des structures semiconductrices de basse dimensionnalité est motivée par ses débouchés en microélectronique et en optoélectronique. Les hétérostructures 2D ont en effet permis d'optimiser les performances de nombreux composants comme les lasers à puits quantiques, voire d'en concevoir de nouveaux. Bien qu'apparues il y a une trentaine d'années seulement, ces hétérostructures sont déjà devenues des réalités industrielles, par exemple dans le domaine des télécommunications en étant intégrées dans les diodes laser ou dans les transistors hyperfréquences [21]. Afin de répondre aux besoins technologiques croissants en terme de performance et de miniaturisation, des dispositifs exploitant les propriétés des structures 0D sont maintenant envisagés.

La physique des boîtes quantiques semiconductrices auto-organisées a connu un essor considérable depuis les premières expériences de croissance réalisées en 1985 par L.Goldstein et collaborateurs [22], et les expériences de photoluminescence sur boîte unique de J.Y.Marzin et collaborateurs qui ont permis de les caractériser [2]. Parallèlement, la description des états électroniques par différentes méthodes de spectroscopie (absorption, micro-photoluminescence), et le développement de différentes approches théoriques (méthode $\vec{k}.\vec{p}$ [23], méthode des pseudo-potentiels atomiques [24]) ont connu d'importantes avancées.

La boîte quantique est donc un système largement étudié et entièrement caractérisable, tant d'un point de vue théorique qu'expérimental. De plus, sa croissance est aujourd'hui technologiquement maîtrisée. Cela permet d'imaginer et de réaliser des dispositifs originaux, qui tirent parti du confinement des porteurs à trois dimensions, comme les lasers et les amplificateurs à boîtes quantiques. Les développements de sources de photons uniques [25] et de sources de paires de photons intriqués [26] peuvent également être envisagés. Il s'agit donc d'une physique très riche, allant de l'optoélectronique à la cryptographie quantique.

Enfin, de nombreux travaux ont mis en évidence le rôle essentiel que pourrait jouer un "quasi atome" pour l'information quantique. Dans ce domaine, la boîte quantique semiconductrice est à l'heure actuelle un candidat prometteur pour remplacer l'atome unique, proposant ainsi une alternative aux systèmes constitués d'ions piégés ou d'atomes neutres refroidis. Cela est dû, en premier lieu, au fort confinement des porteurs dans une région de dimension nanométrique, et au spectre électronique discret qui en résulte. D'autre part, la relative inefficacité des mécanismes classiques de relaxation et de décohérence qui interviennent dans les matériaux massifs et les puits quantiques sur lesquels nous reviendrons en section 1.4 permettent de créer des superpositions cohérentes d'états. Ces atouts font des boîtes quantiques des systèmes propices à la réalisation de manipulations cohérentes en vue de l'implémentation de portes logiques. Dans ces dispositifs, on peut envisager de stocker l'information sur un spin individuel, que l'on pourrait manipuler électriquement ou optiquement grâce aux propriétés spécifiques des semiconducteurs.

1.2.2.3 Etats électroniques et structure fine excitonique dans une boîte quantique

Dans cette partie, nous nous limiterons à la description des états électroniques dans une boîte quantique possédant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance (groupe de symétrie D_{2d}). Nous verrons par la suite que ce n'est pas le cas en réalité : la brisure de symétrie aura des conséquences sur la structure fine des excitons, que nous détaillons dans la partie suivante.

Pour décrire les états électroniques dans une boîte quantique, le confinement des porteurs dans la boîte peut être modélisé par un potentiel rectangulaire suivant l'axe de croissance de l'échantillon (comme celui d'un puits quantique), et par un potentiel parabolique dans le plan perpendiculaire à l'axe de croissance. Il faut alors résoudre le système d'équations sur les fonctions enveloppes similaire à 1.16 et 1.20 avec le potentiel de confinement choisi.

Les niveaux d'énergie discrets d'une boîte quantique sont présentés sur la Figure 1.3(b). La dénomination des états est calquée sur la nomenclature de la physique atomique. A chaque état enveloppe est associée une valeur du nombre quantique orbital m_z et on note les états liés du système s ($m_z=0$) pour l'état fondamental de dégénérescence 2, p ($m_z=\pm 1$) pour le premier état excité de dégénérescence 4, d ($m_z=0, \pm 2$) pour le deuxième état excité de dégénérescence 6. Avec cette nomenclature, s_c (resp. p_c) est le premier (resp. le second) niveau de la bande de conduction et s_v (resp. p_v) est le premier (resp. le second) niveau de la bande de valence.

L'excitation optique conduit à l'injection d'une paire électron-trou dans la boîte quantique. Nous continuerons par abus de langage à l'appeler *exciton*, bien que l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou ne constitue qu'une correction énergétique mineure en comparaison du potentiel de confinement de la boîte. La structure fine de la paire électron/trou joue un rôle fondamental dans les propriétés de spin [27, 28, 29, 10] : c'est pourquoi nous nous y intéressons ici.

Nous détaillons la structure fine de deux complexes excitoniques qui peuvent se former à l'excitation : l'*exciton neutre* et l'*exciton chargé* (ou trion).

L'exciton neutre

La promotion de l'électron de l'état de valence $|s_v\rangle$ vers l'état excité de conduction $|s_c\rangle$ (excitation résonante) laisse, dans l'espace réel, un trou dans la bande de valence. Nous nous retrouvons dans une situation où il y a un trou dans l'état $|s_v\rangle$ et un électron sur l'état $|s_c\rangle$ en interaction coulombienne. C'est l'exciton dans son état fondamental. Nous allons calculer dans ce qui suit les énergies propres et les états propres de l'exciton. Par souci de simplicité, nous négligeons l'interaction spin-orbite.

La fonction d'onde de l'électron de conduction $\phi_{c,0}(r_e)$ s'écrit : $F^c(\mathbf{r}_e)u_{c,0}(\mathbf{r})\chi_{\sigma_c}(\sigma)$ et celle de l'électron de valence (trou) $\phi_{v,0}(r_h)$ s'écrit : $F^v(\mathbf{r}_e)u_{v,0}(\mathbf{r})\chi_{\sigma_v}(\sigma)$. $F(\mathbf{r})$ désigne la fonction enveloppe, $u_{v,0}$ et $u_{c,0}$ les fonctions périodiques de Bloch. Enfin, χ_{σ_c} et χ_{σ_v} sont des fonctions de spin telles que $\chi_{\sigma_i}(\sigma_j) = \delta_{i,j}$.

La fonction d'onde de la paire électron-trou s'écrit alors (en antisymétrisant et en normalisant cette fonction) :

$$\begin{aligned} \Psi_{c,v}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = & \frac{1}{\sqrt{2}} [F^c(\mathbf{r}_e)u_{c,0}(\mathbf{r}_e)\chi_{\sigma_c}(\sigma_1)F^v(\mathbf{r}_h)u_{v,0}(\mathbf{r}_h)\chi_{\sigma_v}(\sigma_2) \\ & - F^c(\mathbf{r}_h)u_{c,0}(\mathbf{r}_h)\chi_{\sigma_c}(\sigma_2)F^v(\mathbf{r}_e)u_{v,0}(\mathbf{r}_e)\chi_{\sigma_v}(\sigma_1)] \end{aligned} \quad (1.24)$$

L'étape suivante consiste à faire agir l'interaction coulombienne. Elle peut s'écrire sous la forme d'un *terme direct* :

$$\int \int \int d^3r_e d^3r_h |\phi_{c,0}(r_e)|^2 \frac{e^2}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} |\phi_{v,0}(r_h)|^2 \quad (1.25)$$

Et d'un *terme d'échange* :

$$\int \int \int d^3r_e d^3r_h \phi_{c,0}^*(r_e)\phi_{v,0}^*(r_h) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \phi_{v,0}(r_e)\phi_{c,0}(r_h) \quad (1.26)$$

Nous obtenons de cette façon les énergies propres et les états propres du système paire électron-trou. Le résultat fait apparaître un singulet en énergie qui correspond à un état optiquement actif, l'exciton brillant ; puis un triplet associé à trois excitons noirs. Le détail du calcul est donné dans le thèse de M. Sénès [28]. Cette approche simplifiée ne tient pas compte du couplage spin-orbite, mais elle permet de mettre en évidence les énergies d'échange courte et longue portée, et de connaître leur origine

physique. L'interaction d'échange entre l'électron et le trou comporte deux contributions :

- (i) L'interaction à "courte portée", qui peut être définie comme une interaction de contact. Elle quantifie l'interaction d'échange lorsque l'électron et le trou sont dans la même cellule élémentaire. Elle dépend du moment cinétique des porteurs et de la symétrie du système à l'échelle atomique.
- (ii) L'interaction à "longue portée", qui s'exprime comme une interaction dipôle-dipôle. Elle correspond au cas où l'électron et le trou ne sont pas dans la même cellule élémentaire. Cette interaction ne couple que les excitons brillants $|1, \pm 1\rangle$. Elle traduit l'effet de réduction de symétrie du potentiel de confinement sur les fonctions enveloppes électron/trou, ainsi que les effets d'interface.

Nous nous intéressons à présent à la structure fine de l'exciton neutre qui apparaît du fait de l'interaction d'échange courte portée et longue portée entre l'électron et le trou qui vient d'être introduite. Pour la décrire, nous allons tenir compte du couplage spin-orbite, en considérant uniquement les états d'exciton lourd et d'exciton léger.

Nous prendrons, comme base servant à la construction de l'exciton lourd, les trous lourds de spin $J = 3/2$ (et de projection $J_z = \pm 3/2$) et les électrons de spin $S = 1/2$ (et de projection $S_z = 1/2$). Quatre états excitoniques peuvent donc être formés, qui sont dégénérés lorsque l'Hamiltonien d'interaction d'échange (que nous introduisons ensuite) est négligé :

- Au premier ordre de l'approximation dipolaire électrique, les états de moment angulaire total $|M = J + S| = 2$ ne se couplent pas à la lumière, et sont donc optiquement inactifs (excitons " noirs "). Nous détaillons ce point dans le paragraphe 1.3.
- Les états avec $|M| = 1$, quant à eux, sont optiquement actifs (excitons " brillants ").

La contrainte et le fort confinement selon la direction de croissance lèvent la dégénérescence entre les excitons lourds et les excitons légers. Ils sont séparés en énergie par plusieurs dizaines de meV . Les excitons lourds se situent à plus basse

énergie, dans le cas d'une compression bi-axiale. En conséquence, les excitons légers, sont situés beaucoup plus haut en énergie ; c'est pourquoi nous ne les considérerons pas par la suite.

Remarque La séparation entre les trous lourds et les trous légers dans la bande de valence (qui conduit à la formation de l'exciton lourd et de l'exciton léger) est à *double tranchant*. Luttinger comme Bir et Pikus ont montré, à travers leur hamiltonien respectif, l'importance de la symétrie sur les états de valence. Si ces hamiltoniens sont à l'origine d'une séparation entre trous lourds et trous légers, une brisure de symétrie provoquée par l'anisotropie du potentiel de confinement dans le cas de Luttinger ou par une distribution inhomogène des contraintes dans le cas de Bir et Pikus peut remélanger les états et rendre beaucoup plus complexe les propriétés de spin du trou.

Nous négligeons ici ce mélange d'état des trous. Nous nous intéressons à des boîtes quantiques ayant des symétries spécifiques (D_{2d} et C_{2v}), dans des semiconducteurs cristallisant dans la structure Blende de Zinc.

L'hamiltonien qui décrit l'interaction d'échange électron-trou pour un exciton lourd formé d'un trou lourd de moment angulaire J et d'un électron de spin S est donné par [30, 31, 32] :

$$H_{e,h}^{exc} = 2\Delta_0 \hat{J}_z \hat{s}_z + \delta_1 (\hat{J}_x \hat{s}_x - \hat{J}_y \hat{s}_y) + \delta_2 (\hat{J}_x \hat{s}_x + \hat{J}_y \hat{s}_y) \quad (1.27)$$

$\hat{s}$ et $\hat{J}$ sont les opérateurs de spin effectif de l'électron et du trou lourd (en unité de $\hbar$).

La matrice de l'Hamiltonien d'échange s'écrit donc dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$:

$$H^{exc} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 1 & 1 & -\delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

Δ_0 et δ_2 sont issus de l'interaction d'échange à courte portée, tandis que δ_1 contient à la fois une contribution courte et longue portée.

La première partie de l'équation 1.27 est à l'origine des éléments diagonaux de la matrice et le second donne les éléments non diagonaux. On peut remarquer que H^{exc} est diagonale par blocs. En conséquence, les excitons brillants et noirs ne se mélangent pas. Leur énergie diffère de l'énergie d'échange électron-trou Δ_0 . A cause des éléments non diagonaux, les excitons brillants (noirs) sont hybridés :

- Si la boîte quantique possède une symétrie de type D_{2d} , les états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ sont états propres de H^{exc} .
- Si la symétrie de roto-inversion est brisée (symétrie C_{2v}), comme dans les boîtes étudiées dans les chapitres 3 et 4, le moment angulaire n'est plus un bon nombre quantique et les excitons $|M| = \pm 1$ sont mélangés. Ils forment deux nouveaux états propres non-dégénérés :

$$|X\rangle = \frac{|+1\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}} \quad et \quad |Y\rangle = \frac{|+1\rangle - |-1\rangle}{i\sqrt{2}}, \quad (1.29)$$

Ils sont séparés de l'énergie d'échange anisotrope entre l'électron et le trou qui vaut δ_1 . Ces nouveaux états propres montrent que les transitions optiques impliquant les états excitoniques $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ seront polarisées linéairement selon les directions des axes d'anisotropie (usuellement les directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ dans le cas de semiconducteurs ZB).

En revanche, les excitons noirs, pour lesquels $|M| = 2$, sont toujours non dégénérés, indépendamment de la symétrie (D_{2d} ou C_{2v}).

Le Tableau 1.2 résume les états propres de l'exciton et les énergies associées.

D_{2d}		C_{2v}	
ENERGIE	Etats propres	ENERGIE	Etats propres
$\frac{1}{2}\Delta_0$	$ -1\rangle$	$\frac{1}{2}\Delta_0 + \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+1\rangle + -1\rangle)$
$\frac{1}{2}\Delta_0$	$ +1\rangle$	$\frac{1}{2}\Delta_0 - \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+1\rangle - -1\rangle)$
$-\frac{1}{2}\Delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle + -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\Delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle + -2\rangle)$
$-\frac{1}{2}\Delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{i\sqrt{2}}(+2\rangle - -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\Delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{i\sqrt{2}}(+2\rangle - -2\rangle)$

TABLE 1.2 – *Etats propres de l'exciton lourd dans les structures de symétrie D_{2d} et de plus basse symétrie.*

Enfin, la Figure 1.5 représente la structure fine de l'exciton lourd dans une boîte quantique.

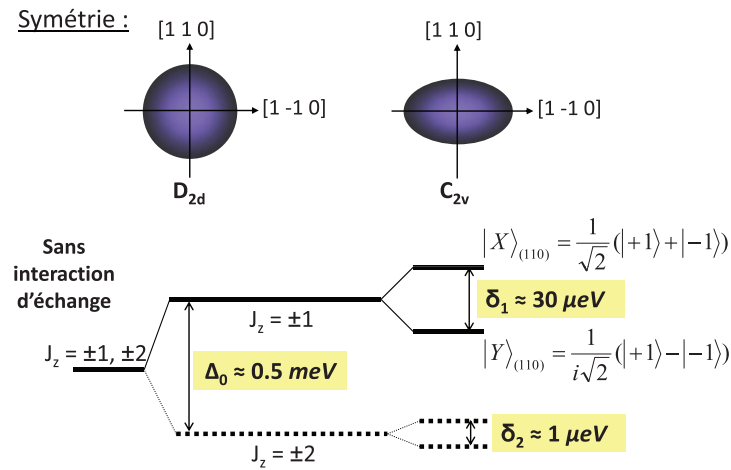


FIGURE 1.5 – *Structure fine de l'exciton lourd dans une boîte quantique de symétrie D_{2d} ou C_{2v} .*

L'origine de l'énergie d'échange anisotrope dans les boîtes quantiques est encore à l'heure actuelle discutée. Différentes contributions ont tout de même été identifiées, même si leur importance respective dans l'anisotropie de l'interaction électron-trou reste indéterminée :

- La première contribution serait liée à l'anisotropie de forme des boîtes quantiques : leur base est allongée selon une direction cristallographique, formant une ellipse dont les axes principaux sont dirigés selon $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ [33].
- D'autre part, du fait de la configuration des liaisons, une brisure de symétrie apparaît à l'interface InAs/GaAs.
- Enfin, l'inhomogénéité de composition des boîtes due à l'interdiffusion du gallium conduit à une asymétrie des contraintes localisées aux interfaces de la boîte, pouvant déformer les fonctions enveloppe de l'électron et du trou [33, 29].

La structure fine est couramment observée en spectroscopie de luminescence sur boîte quantique unique. L'analyse de la polarisation linéaire de la luminescence suivant les axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ fait clairement apparaître le splitting d'échange anisotrope. Dans les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs ou InAs/GaAs, la valeur de l'interaction d'échange électron-trou anisotrope δ_1 est typiquement de l'ordre de 30 à 100 μeV [10, 33, 34]. La valeur de δ_1 peut bien sûr varier d'une boîte à l'autre.

Le bi-exciton Le bi-exciton se compose de deux paires électron-trou, qui forment deux singulets de spin sur les états de conduction et de valence de la boîte. Son état s'écrit :

$$|2X_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X\rangle|X\rangle + |Y\rangle|Y\rangle) \quad (1.30)$$

La Figure 1.6 illustre la cascade radiative qui lui est associée. Le spectre présenté montre bien le renversement caractéristique des composantes polarisées du bi-exciton par rapport à l'exciton (*structure miroir*).

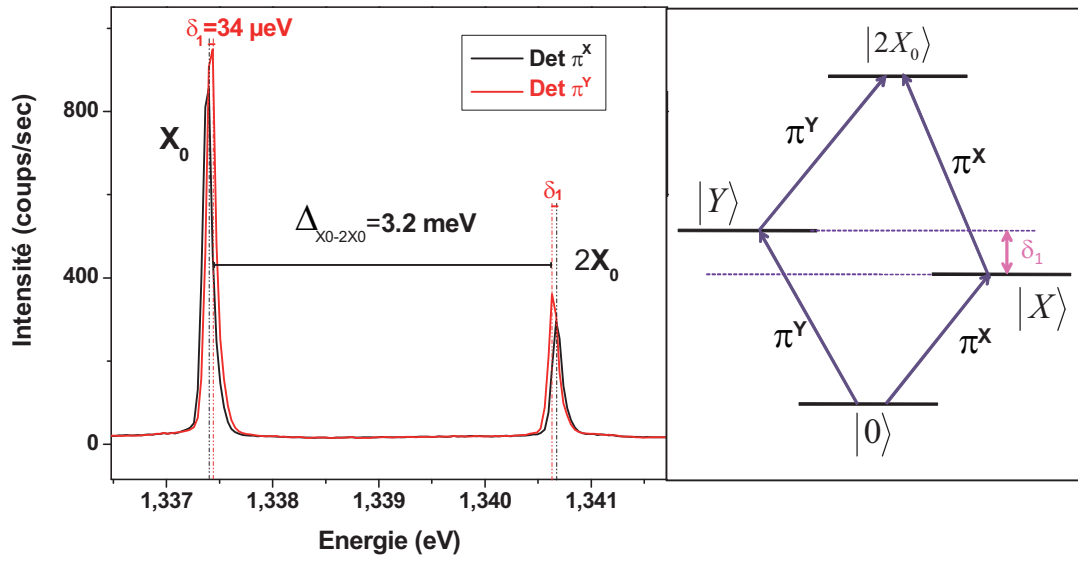


FIGURE 1.6 – Présentation d'un spectre de luminescence analysée avec une polarisation de détection linéaire (respectivement π^X et π^Y). Les composantes de luminescence de l'exciton X_0 et du bi-exciton $2X_0$ sont linéairement polarisées et renversées en polarisation (structure miroir). A droite, on a représenté la cascade radiative associée au bi-exciton.

Les corrections coulombiennes font que $E_{2X_0} \neq (E_X + E_Y)$. Selon la taille de la boîte quantique, les raies du bi-exciton peuvent se situer à plus haute ou plus basse énergie que le doublet excitonique [35].

Le trion Dans les boîtes contenant en moyenne un trou de dopage sur l'état de valence (échantillon dopé p), la luminescence analysée est celle du trion chargé positivement X^+ . La photogénération d'une paire électron/trou conduit à la formation d'une pseudo-particule qui se compose, dans son état de plus basse énergie, d'un singulet de trou et d'un seul électron.

Son état s'écrit :

$$\left| X^+, \pm \frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle - \left| -\frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \right) \otimes \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle \quad (1.31)$$

De la même façon, dans les boîtes contenant en moyenne un électron de dopage (échantillon dopé n), un électron est déjà présent sur le niveau fondamental de conduction de la boîte. Cette fois-ci, la photogénération d'une paire électron/trou conduit à la formation d'une pseudo-particule qui se compose d'un singulet d'électrons (dans l'état de conduction le plus bas) et d'un trou (dans l'état de valence le plus haut). C'est le trion chargé négativement, noté X^- .

Son état s'écrit :

$$\left| X^-, \pm \frac{3}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle - \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right) \otimes \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle \quad (1.32)$$

Du fait de la dégénérescence de Kramers en l'absence de champ magnétique externe, les trions X^+ et X^- ne présentent pas de structure fine.

Dans les échantillons dopés chimiquement (n ou p), l'état de charge des boîtes fluctue dans le temps. Cela peut conduire à l'observation en photoluminescence stationnaire de plusieurs transitions excitoniques provenant de la même boîte quantique, comme nous le verrons dans le chapitre 3. Grâce à l'emploi de structures à charge ajustable, nous verrons dans le chapitre 4 qu'il est possible de contrôler l'état de charge des boîtes de façon fiable, en jouant simplement sur une tension de grille appliquée à l'échantillon.

Maintenant que nous avons défini les états électroniques de la boîte quantique et de la couche de mouillage (considérée comme un puits quantique), il est intéressant de se demander comment ces états sont couplés par pompage optique. Cela joue en effet un rôle central pour la génération de porteurs polarisés en spin.

1.3 Le pompage optique orienté

Lorsqu'un semiconducteur interagit avec une onde électromagnétique d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite, un photon transfère à la fois son énergie, son vecteur d'onde et son moment cinétique à la paire électron-trou photogénérée. Ainsi, en polarisant de manière appropriée les photons de l'onde excitatrice, les porteurs qui pourront être photogénérés seront sélectionnés en fonction de leur moment cinétique de spin. De cette façon, une polarisation de spin électronique sera créée [36, 37]. Ces propriétés particulières sont utilisées dans les expériences présentées dans le chapitre 3.

Comme nous l'avons vu précédemment, la structure de bandes ainsi que la structure fine excitonique dépendent de la dimensionnalité de la structure étudiée. Cela aura des conséquences sur les règles de sélection optique et sur les conditions de génération d'une polarisation de spin électronique.

1.3.1 Structures 3D

Pour un semiconducteur massif, la règle d'or de Fermi donne la probabilité de transition d'un état de la bande de valence (état initial i) vers un état de la bande de conduction (état final f) sous l'action d'un rayonnement électromagnétique. Cette probabilité s'écrit :

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle f | H_{op} | i \rangle \right|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega_0) \quad (1.33)$$

La fonction de Dirac (δ) traduit la conservation de l'énergie entre l'état initial et l'état final après l'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega_0$. L'élément de matrice $\left| \langle f | H_{op} | i \rangle \right|^2$ détermine les transitions permises et leurs intensités relatives.

Pour une onde plane monochromatique définie par son champ électrique $E(r, t) = \frac{E_0}{2} \vec{e} (e^{i(\omega_0 t - \vec{q} \cdot \vec{r})} + c.c.)$, dans l'approximation dipolaire électrique, cet élément de matrice s'écrit :

$$\left| \langle f | H_{op} | i \rangle \right|^2 = \left(\frac{eE_0}{2m_0\omega_0} \right)^2 \left| \langle f | \vec{e} \cdot \vec{p} | i \rangle \right|^2, \quad (1.34)$$

$\vec{e}$ est le vecteur polarisation de l'onde électromagnétique, $\vec{q}$ son vecteur d'onde et e , $\vec{p}$ et m_0 respectivement, la charge, l'impulsion et la masse de l'électron dans le vide.

Dans un semiconducteur massif, nous avons vu dans le paragraphe 1.1.1 que les fonctions d'onde des états électroniques peuvent s'écrire sous la forme de fonctions de Bloch du type :

$$\Phi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = C e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.35)$$

Grâce à cela, nous pouvons calculer l'élément de matrice optique entre un état de la bande de valence et un état de la bande de conduction :

$$\left| \left\langle \Phi_{c,\vec{k}}(\vec{r}) | H_{op} | \Phi_{v,\vec{k}'}(\vec{r}) \right\rangle \right|^2 = \left(\frac{eE_0}{2m_0\omega_0} \right)^2 \left| \left\langle u_{c,\vec{k}}(\vec{r}) | \vec{e} \cdot \vec{p} | u_{v,\vec{k}'}(\vec{r}) \right\rangle \right|^2 \delta(\vec{k}', \vec{k} + \vec{q}) \quad (1.36)$$

La notation de Dirac δ traduit la conservation du vecteur d'onde. Pour calculer cet élément de matrice optique, nous utilisons les fonctions $u_{n,\vec{k}}$ introduites dans le paragraphe 1.1.1 qui décrivent les états aux extrema des bandes de conduction et de valence d'un semiconducteur cristallisant dans la structure Blende de Zinc.

Nous en déduisons les transitions optiques autorisées ainsi que leur force d'oscillateur, proportionnelle au carré de l'élément de matrice dipolaire électrique, pour une onde de direction et de polarisation donnée. Ces règles de sélection sont regroupées dans la Figure 1.7.

Blende de zinc

$e-h_{HH}$	$e \parallel (Ox)$	$e \parallel (Oy)$	$e \parallel (Oz)$
$q \parallel (Ox)$	impossible	$1/2 \pi^2$	0
$q \parallel (Oy)$	$1/2 \pi^2$	impossible	0
$q \parallel (Oz)$	$1/2 \pi^2$	$1/2 \pi^2$	impossible

$e-h_{LH}$	$e \parallel (Ox)$	$e \parallel (Oy)$	$e \parallel (Oz)$
$q \parallel (Ox)$	impossible	$1/6 \pi^2$	$2/3 \pi^2$
$q \parallel (Oy)$	$1/6 \pi^2$	impossible	$2/3 \pi^2$
$q \parallel (Oz)$	$1/6 \pi^2$	$1/6 \pi^2$	impossible

$e-h_{SO}$	$e \parallel (Ox)$	$e \parallel (Oy)$	$e \parallel (Oz)$
$q \parallel (Ox)$	impossible	$1/3 \pi^2$	$1/3 \pi^2$
$q \parallel (Oy)$	$1/3 \pi^2$	impossible	$1/3 \pi^2$
$q \parallel (Oz)$	$1/3 \pi^2$	$1/3 \pi^2$	impossible

FIGURE 1.7 – Transitions autorisées en $\vec{k} = \vec{0}$ entre les sous-bandes de valence et la bande de conduction par une onde électromagnétique de polarisation $\vec{e}$ et de vecteur d'onde $\vec{q}$. $\Pi^2 = E_p/(2m_0)$ et forces d'oscillateur correspondantes. E_p est l'énergie de Kane du semiconducteur, d'après [13]

Dans toutes les expériences présentées par la suite, la lumière excitatrice se propage parallèlement à l'axe de croissance des échantillons ($\vec{q} \parallel (Oz)$). Nous connaissons donc, d'après le tableau 1.7 les transitions optiques autorisées dans un semiconducteur massif excité par une lumière polarisée circulairement droite (σ^+) ou gauche (σ^-).

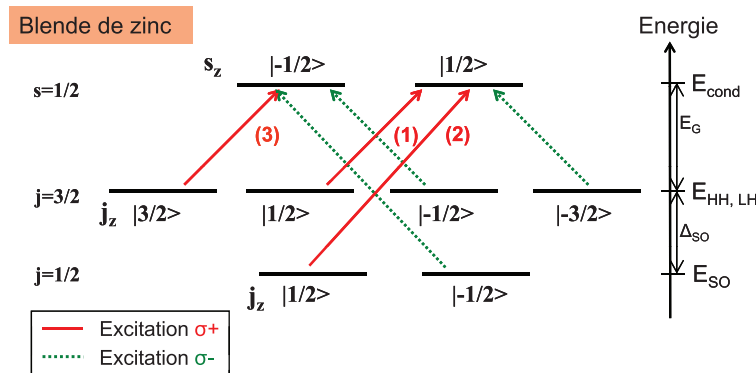


FIGURE 1.8 – Règles de sélection optique en $\vec{k} = \vec{0}$ pour l'excitation d'un semiconducteur massif à l'énergie $E_{exc} = E_G$. Les chiffres entre parenthèses indiquent les intensités relatives des transitions. Les états de valence sont représentés en formalisme de trou.

La Figure 1.8 illustre le fait que l'excitation sélective à l'énergie $E_{exc} = E_G$ d'un semiconducteur ZB massif par une lumière polarisée circulairement droite provoque la transition de 3 électrons de spin $-1/2$ pour 1 électron de spin $1/2$ vers la bande de conduction. Le taux de polarisation électronique défini par : $P = \frac{n^+ - n^-}{n^+ + n^-}$ peut atteindre la valeur de 50% au maximum. Si l'énergie d'excitation est supérieure à $E_G + \Delta_{SO}$, la transition de deux électrons supplémentaires de spin $1/2$ de la bande split-off vers la bande de conduction est possible, ce qui réduit à 0 le taux de polarisation de spin électronique [37].

Pour qu'une polarisation de spin soit créée dans un semiconducteur massif, il faut donc que l'énergie de l'onde excitatrice E_{exc} soit ajustée de sorte que : $E_G \leq E_{exc} \leq E_G + \Delta_{SO}$. On rappelle que, dans *GaAs*, $\Delta_{SO}=340$ meV [12].

Transitions excitoniques Nous avons jusqu'à présent considéré le pompage optique dans un modèle simplifié de transitions bande-à-bande. Nous nous intéressons ici au cas des transitions excitoniques. L'absorption d'un photon dans un semiconducteur massif commence en effet à une énergie inférieure à E_G du fait de la présence des états excitoniques aux énergies $E_G - E_{ex,n}^b$ (cf Equation 1.13).

Lorsqu'on excite le semiconducteur avec une lumière polarisée circulairement $\sigma^\pm$, la projection du moment cinétique dans la direction du vecteur d'onde est ± 1 . Par conservation du moment cinétique, seuls les états excitoniques de moment $s_{z,e} + j_{z,h} = J_z = \pm 1$ pourront se coupler à la lumière (lors d'une transition à un photon). Ainsi, les états de l'exciton lourd de moment cinétique $|1, \pm 1\rangle$, $|1, 0\rangle$ sont optiquement actifs ou "brillants" tandis que les états $|2, \pm 2\rangle$ sont optiquement inactifs ou "noirs". De même, les états de l'exciton léger de moment cinétique $J_z=|1, \pm 1\rangle$ sont optiquement actifs tandis que les états $J_z=|2, 0\rangle$ sont noirs.

Ces règles de sélection sont valables non seulement pour l'excitation mais aussi pour l'émission lors de la recombinaison excitonique. La relation qui existe entre la polarisation de spin des porteurs et la polarisation de la luminescence permet donc de sonder optiquement les propriétés de spin électronique du matériau.

1.3.2 Structures 2D et 0D

Le calcul des probabilités de transition dans les structures de plus basse dimensionalité peut être fait de la même façon que pour les structures 3D. On utilise cette fois-ci les fonctions d'onde décrites dans le formalisme de la fonction enveloppe.

Le calcul de l'élément de matrice dipolaire électrique conduit alors aux mêmes règles de sélection que celles données dans le Tableau 1.7. Dans ces structures, le confinement lève la dégénérescence entre les bandes de trous lourds et de trous légers en $\vec{k}=\vec{0}$. Ainsi, en théorie, si on excite sélectivement la transition excitonique $|1, +1\rangle$ (resp. $|1, -1\rangle$) avec une lumière polarisée circulairement σ^+ (resp. σ^-), la polarisation de spin électronique peut atteindre 100%. Cependant, comme nous allons le voir, les règles de sélection dépendent fortement du complexe excitonique considéré.

Règles de sélection pour l'exciton neutre X_0 Les états propres de l'exciton neutre dans une boîte quantique de symétrie C_{2v} s'écrivent :

$$|X\rangle = \frac{|+1\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}} \quad \text{et} \quad |Y\rangle = \frac{|+1\rangle - |-1\rangle}{i\sqrt{2}}, \quad (1.37)$$

Ils conduisent aux règles de sélection optique présentées sur la Figure 1.9.

Boîtes quantiques

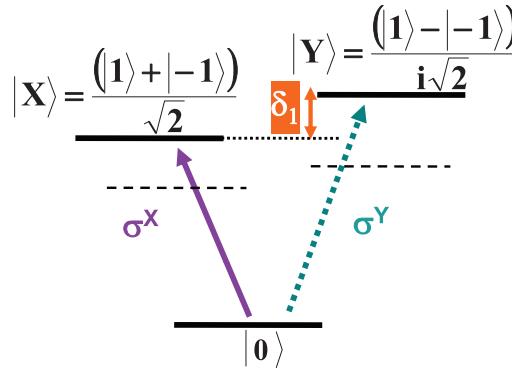


FIGURE 1.9 – Règles de sélection optique en $\vec{k} = \vec{0}$ correspondant à l'excitation de l'exciton neutre dans une boîte quantique. Les traits pointillés représentent les états noirs.

On peut exciter sélectivement à résonance la transition de l'exciton lourd avec une lumière polarisée linéairement (σ^X ou σ^Y) qui est une superposition cohérente de deux ondes polarisées circulairement avec des hélicités opposées. Ce type d'excitation n'induit aucun déséquilibre entre les populations des états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ mais génère une superposition cohérente de ces états (dans le cas d'une excitation résonante) [37].

Selon la polarisation de l'excitation, on créera une population sur l'état $|X\rangle$ ou sur l'état $|Y\rangle$. Dans ces conditions, les excitons photogénérés s'alignent selon la direction définie par le champ électrique de l'onde excitatrice. On parle alors *d'alignement optique des excitons*.

Règles de sélection pour le trion X^+ et X^- Dans le cas des trions X^+ ou X^- , l'absence de structure fine simplifie les règles de sélection optiques. Cette fois-ci, si on excite sélectivement à résonance la transition de l'exciton lourd avec une lumière polarisée circulairement, cela conduit à une luminescence co-polarisée ou contra-polarisée avec l'excitation. Cette polarisation de luminescence traduit l'orientation de spin du porteur non apparié (l'électron ou le trou selon le cas). Ces règles de sélection sont présentées sur la Figure 1.10.

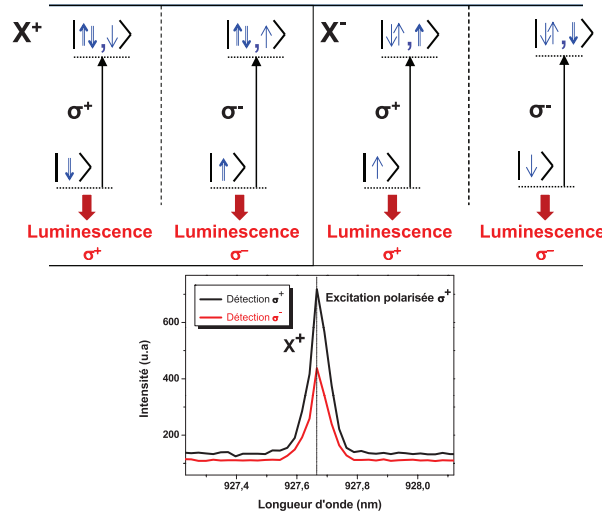


FIGURE 1.10 – Règles de sélection optique correspondant à l'excitation du trion chargé positivement X^+ et du trion chargé négativement X^- dans une boîte quantique. Un spectre typique pour le trion X^+ est présenté : la luminescence est co-polarisée avec le laser d'excitation. Aucune structure fine n'apparaît en champ nul.

De façon générale, l'efficacité du pompage optique dépend des temps de relaxation caractéristiques, en particulier du rapport entre le temps de relaxation de spin, le temps de capture (dans le puits ou la boîte) et le temps de vie radiatif de l'exciton.

En particulier, dans les puits quantiques GaAs/AlGaAs dont la direction de croissance est selon l'axe [001], des expériences de photoluminescence résolues temporellement montrent que le temps de relaxation de spin de l'électron, à température cryogénique, est de l'ordre de la centaine de picosecondes [38], et de seulement quelques picosecondes pour le trou. Le mélange des états de trous lourds et de trous légers, malgré leur levée de dégénérescence, conduit en effet à un mécanisme de relaxation pour les trous similaire à celui d'Elliot-Yaffet. Quant au temps de capture de la couche de mouillage vers la boîte, il est de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes [39].

Lorsqu'on excite une boîte quantique hors résonance à une énergie proche du gap de la couche de mouillage, on peut donc considérer que l'orientation de spin de l'électron est conservé, tandis que le spin du trou, une fois relaxé sur le niveau fondamental de la boîte, est perdu [37, 40, 39].

1.4 Les principaux mécanismes de relaxation de spin

Les structures semiconductrices ont des propriétés intéressantes pour la manipulation du spin. Les travaux concernant le pompage optique orienté décrits dans le paragraphe précédent en témoignent. L'utilisation du spin des porteurs dans les semiconducteurs (allant du massif aux boîtes quantiques) est l'un des enjeux majeurs des recherches menées à l'heure actuelle dans le domaine de l'électronique de spin. Elle se heurte néanmoins à deux problèmes importants. D'une part, la durée de vie des porteurs est finie. D'autre part, les interactions entre le spin et l'environnement (noyaux, phonons) sont à l'origine de différents mécanismes de relaxation de spin et de décohérence.

Pour clore ce chapitre, nous discutons de ces limites, en décrivant les principaux mécanismes de relaxation de spin des porteurs dans les structures semiconductrices, en particulier dans les boîtes quantiques. Ces mécanismes ont été formulés pour l'essentiel dans les années 1970 et sont décrits plus en détail dans les références [37, 41, 42].

1.4.1 Les mécanismes de relaxation du massif

Nous présentons ici les trois mécanismes de relaxation de spin qui jouent un rôle important dans les semiconducteurs massifs.

1.4.1.1 Le mécanisme d'Elliott-Yafet

Ce mécanisme est basé sur le mélange des états de spin des électrons de la bande de conduction pour des vecteurs $\vec{k} \neq \vec{0}$. En raison du couplage spin-orbite, les états électroniques n'y sont donc pas des états de spin purs. Ainsi, *même s'il n'est pas dépendant du spin*, tout mécanisme de diffusion de l'électron qui provoque le passage d'un état de vecteur $\vec{k}$ vers un état $\vec{k}'$ peut conduire également à la relaxation du spin [43]. Ce processus de diffusion peut être l'interaction avec le potentiel coulombien d'une impureté ionisée (contribution de Elliott), ou encore l'interaction avec les phonons acoustiques ou optiques (contribution de Yafet). Le temps de relaxation de spin est dans ce cas proportionnel au temps de relaxation du moment $\vec{k}$.

La relaxation du spin des trous peut s'expliquer par un mécanisme similaire, car le couplage entre les sous-bandes de trous lourds et de trous légers induit un mélange des états de spin de trou pour $\vec{k} \neq \vec{0}$.

Le temps de relaxation de spin des porteurs τ_s par ce mécanisme est donné par la relation [37] :

$$\frac{1}{\tau_s(E_k)} \cong \left(\frac{\Delta_{SO}}{E_G + \Delta_{SO}} \right)^2 \left(\frac{E_k}{E_G} \right)^2 \frac{1}{\tau_p(E_k)}, \quad (1.38)$$

où τ_p est le temps de relaxation du vecteur d'onde, E_G est l'énergie de bande interdite, E_k est l'énergie de la bande de conduction en $\vec{k}$ quelconque, et Δ_{SO} est le paramètre d'interaction spin-orbite.

Le mécanisme d'Elliott-Yafet est prépondérant dans les semiconducteurs de faible énergie de bande interdite, et pour lesquels le couplage spin-orbite est important. L'équation 1.38 montre que l'augmentation de la fréquence de "collision" accroît l'efficacité de ce mécanisme. Finalement, plus il y a de collisions, plus la mémoire sur l'orientation originale du spin se dissipe.

1.4.1.2 Le mécanisme de D'Yakonov-Perel

Ce mécanisme intervient dans les cristaux non centro-symétriques. L'interaction spin-orbite lève la dégénérescence de spin de la bande de conduction en $\vec{k} \neq 0$: les électrons de même vecteur $\vec{k}$ ($\neq \vec{0}$) et de spins opposés ont donc des énergies différentes.

L'effet de l'interaction spin-orbite peut être décrite par un champ magnétique effectif interne au cristal dont l'amplitude et la direction dépendent de $\vec{k}$ [44]. L'électron voit alors son spin effectuer une précession autour de ce champ effectif. Comme la direction du champ change à chaque processus de collision, le temps de relaxation de spin (τ_s) dépend de la fréquence des collisions ($1/\tau^*$). Deux cas limites se présentent alors :

- (i) Lorsque l'intervalle de temps entre deux collisions est long, le spin a le temps de précesser entre deux collisions. L'orientation du spin est alors perdue au bout du temps de relaxation moyen du moment $\vec{k}$, noté τ^* . Ce régime très particulier a été observé par R.T.Harley et collaborateurs sur un gaz d'électrons bi-dimensionnel à l'énergie de Fermi dans des puits *GaAs/AlGaAs* fortement dopés *n* à très basse température (1.8 K) [45].
- (ii) En revanche, lorsque l'intervalle de temps entre deux collisions est court, la relaxation de spin est fortement retardée car l'axe de précession subit des changements fréquents de direction. La précession du spin de l'électron s'effectue alors autour d'un champ magnétique fluctuant, dont la direction et l'amplitude changent à chaque collision. La phase suit une sorte de *marche au hasard*. L'information sur la phase est moyennée entre chaque collision, ce qui conduit à une augmentation du temps de relaxation de spin avec la fréquence de collisions, à l'inverse du mécanisme d'Elliot-Yafet décrit précédemment :

$$\tau_s^{-1} \propto \Omega^2 \tau^*$$

Ce phénomène est connu sous le nom de "*motional narrowing*" (rétrécissement par le mouvement). Il est prépondérant au-dessus de 50K dans les semiconducteurs intrinsèques.

1.4.1.3 Le mécanisme Bir-Aronov-Pikus

Ce mécanisme se manifeste lors des processus de diffusion impliquant un électron et un trou. Les deux particules peuvent relaxer simultanément leur spin par l'intermédiaire de l'interaction d'échange électron-trou. L'efficacité de ce mécanisme dépend directement de la probabilité des processus de diffusion électron-trou, qui est particulièrement élevée dans les matériaux massifs dopés.

1.4.1.4 Conclusion

Les trois mécanismes de relaxation que nous venons de présenter sont liés à l'existence et à la complexité de la structure de bandes des matériaux massifs. Chacun d'entre eux peut être prépondérant : cela dépend du semiconducteur considéré, de son dopage et de sa géométrie, mais aussi des conditions de l'expérience. Ainsi, dans les matériaux de type III-V dopés n , le mécanisme de D'Yakonov-Perel est prépondérant pour des températures supérieures à 50K. Pour des températures plus faibles, c'est le mécanisme d'Elliott-Yafet qui devient prépondérant. A l'inverse, dans les matériaux de type III-V dopés p , ce sont les mécanismes de D'Yakonov-Perel et de Bir-Pikus qui sont importants. Le mécanisme de Bir-Pikus devient prépondérant par rapport à D'Yakonov-Perel lorsqu'on augmente la densité d'accepteurs.

La dynamique de spin du trou est, quant à elle, très différente de celle de l'électron. Du fait de la structure de la bande de valence, le temps de relaxation de spin du trou est généralement beaucoup plus court que celui de l'électron, en raison du mélange non négligeable des états de trous lourds et de trous légers, qui conduit à un mécanisme de relaxation de type Elliott-Yafet. C'est pourquoi dans le *GaAs* massif, le temps de relaxation de spin du trou vaut seulement quelques picosecondes à température cryogénique [46], et une centaine de femtosecondes à température ambiante [40].

1.4.2 Les mécanismes de relaxation dans les boîtes quantiques

La différence entre le massif et les hétérostructures de basse dimensionnalité, auxquelles nous nous intéressons dans ce travail, est essentiellement la localisation de la fonction d'onde dans une, deux ou trois dimensions de l'espace. En particulier, le confinement des électrons réduit fortement le couplage spin-orbite à l'origine des processus de relaxation du spin électronique dans les structures de plus grande dimensionnalité [47]. Les mécanismes classiques de relaxation de spin que nous venons d'évoquer sont donc beaucoup moins efficaces, et on s'attend à des temps de relaxation de spin beaucoup plus longs.

De plus, du fait de la limitation des processus de diffusion élastique et inélastique, les mécanismes de décohérence sont également relativement inefficaces, conduisant à des temps de déphasage de l'ordre de 400ps à basse température [9].

Le temps de relaxation du spin électronique dans les boîtes quantiques dépend du complexe excitonique considéré et des conditions de l'expérience (en particulier de l'énergie d'excitation). Ce temps est limité par deux mécanismes : l'*échange entre l'électron et le trou* déjà mentionné dans les paragraphes précédents et l'*interaction hyperfine*.

L'échange électron/trou L'échange entre l'électron et le trou joue un rôle important dans la relaxation de spin des porteurs. Cette interaction modifie en particulier la structure fine de l'exciton neutre : les deux états d'excitons brillants $|\pm 1\rangle$ sont séparés par l'énergie d'échange anisotrope δ_1 . Ceci moyenne à 0 le spin de l'électron photocréé, ce qui conduit à l'absence de polarisation circulaire de luminescence sous pompage optique polarisé circulairement [10].

D'autre part, l'interaction hyperfine est inhibée par l'interaction d'échange courte portée qui sépare les doublets radiatifs et non-radiatifs de l'exciton. Nous verrons que cette interaction joue un rôle important dans le cas du trion, où les termes d'échange s'annulent deux à deux.

L'interaction hyperfine L'interaction hyperfine est l'interaction entre le spin électronique et les spins nucléaires. L'environnement nucléaire, équivalent à un champ magnétique aléatoire, en l'absence de polarisation nucléaire, participe à un mécanisme de déphasage, en un temps typique de la nanoseconde. Dans les matériaux semiconducteurs massifs, ce mécanisme est souvent négligé car les autres mécanismes classiques de relaxation de spin sont beaucoup plus efficaces. D'autre part, la fonction d'onde des électrons est fortement délocalisée par rapport aux fonctions d'ondes atomiques.

Dans les boîtes quantiques, en revanche, l'efficacité de l'interaction hyperfine est accrue par le confinement. Ce mécanisme est particulièrement important dans les matériaux III-V dans lesquels les noyaux présentent des spins élevés (*In* : $\frac{9}{2}$, *Ga* et *As* : $\frac{3}{2}$ pour 100% des isotopes). C'est pour cette raison que le temps de relaxation de spin de l'électron vaut seulement quelques centaines de picosecondes pour le trion en l'absence de champ magnétique externe [48, 49].

L'interaction hyperfine joue un rôle beaucoup moins important dans le cas du trou de valence, en raison du faible recouvrement des fonctions d'onde du trou (de type *p*) et du noyau. Des temps de relaxation de spin du trou beaucoup plus longs sont mesurés dans les structures de basse dimensionnalité où les bandes de trous lourds et de trous légers sont séparées : ils sont de l'ordre de 1 ns dans les puits quantiques [50] et d'au moins 10 ns dans les boîtes quantiques [51, 52].

L'interaction hyperfine est décrite de façon détaillée dans le chapitre 3, où elle joue un rôle important dans la conversion linéaire-circulaire des états propres de boîte quantique par la lumière.

Les deux mécanismes de relaxation que nous venons d'évoquer sont prépondérants dans les boîtes quantiques. Ils sont toutefois inhibés lorsqu'un fort champ magnétique externe est appliqué : dans ces conditions, des temps de relaxation de spin de l'ordre de la centaine de μs pour le trou [53], et de l'ordre de la ms pour l'électron [54] ont été mesurés.

Conclusion Nous avons présenté dans ce chapitre les propriétés électroniques des boîtes quantiques semiconductrices. Ces structures de basse dimensionnalité sont souvent assimilées à des "atomes artificiels". Le confinement des porteurs dans les trois dimensions de l'espace conduit en effet à une densité d'états électroniques discrète. Cela s'accompagne d'une inhibition quasi-complète des mécanismes de relaxation de spin qui interviennent dans le semiconducteur massif. C'est pourquoi il est légitime d'envisager la transposition de certains schémas de contrôle développés en physique atomique à ce type de système en phase condensée.

L'analogie entre la boîte quantique et l'atome unique présente toutefois des limites : l'électron dans la boîte quantique interagit avec son environnement (noyaux, phonons...). Cela conduit à des mécanismes de relaxation et de décohérence dont il faut tenir compte, comme nous le verrons dans les chapitres suivants.

Chapitre 2

Présentation des dispositifs expérimentaux

Sommaire

2.1	Les études hors résonance	54
2.1.1	Le microscope confocal	54
2.1.2	Les sources d'excitation	59
2.1.3	L'interféromètre de Fabry-Pérot	61
2.2	Vers une excitation résonante...	78
2.2.1	Une nouvelle tête de microscope pour une excitation résonante . . .	79
2.2.2	Les outils de façonnage d'impulsions	90

Les études de spectroscopie de luminescence sur boîte quantique unique présentées dans ce manuscrit ont été réalisées à l'aide de deux dispositifs distincts :

- Le premier est optimisé pour des études *hors résonance* : l'excitation se fait à une énergie correspondant à la couche de mouillage des boîtes quantiques. La pièce maîtresse de ce dispositif est le microscope confocal développé au LPCNO par Pierre-François Braun au cours de sa thèse au LPCNO [27]. Durant ma thèse, un interféromètre de Fabry-Pérot a été introduit sur la voie de détection de ce montage afin d'en améliorer la résolution spectrale. Nous avons réalisé les expériences de photoluminescence sur boîte quantique unique *résolues en polarisation* décrites dans le chapitre 3 de ce manuscrit à l'aide de ce dispositif expérimental.
- Le second a été développé afin de détecter le signal issu d'une boîte quantique sous une excitation *résonante*. Pour cela, nous avons conçu une nouvelle tête de microscope. Chacun des éléments optiques qui la compose est optimisé pour une réjection maximale du signal de diffusion parasite du laser d'excitation. Parallèlement, des outils de façonnage ont été développés : ils permettent une mise en forme simple de l'impulsion laser d'excitation. Ce nouveau dispositif nous a permis de mettre en évidence les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique sur boîte quantique unique que nous présentons dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

2.1 Les études hors résonance

Nous présentons ici le dispositif de spectroscopie de luminescence sur boîte quantique unique résolu en polarisation que nous avons utilisé pour les études hors résonance du chapitre 3.

2.1.1 Le microscope confocal

La pièce maîtresse du montage expérimental est le microscope confocal développé par Pierre-François Braun au cours de sa thèse [27].

Il se compose d'une tête remplissant deux fonctions principales : l'injection de lumière et la collection du signal de luminescence. Nous en présentons le schéma de principe sur la Figure 2.1.

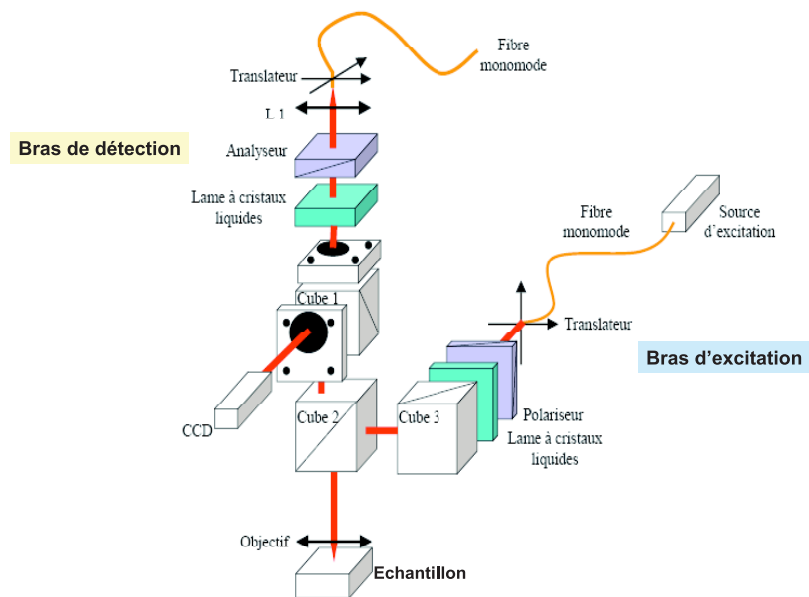


FIGURE 2.1 – Schéma de principe du microscope confocal. Chaque lame de verre est placée dans un cube porteur. L'arrangement particulier qui est choisi permet de corriger les erreurs de polarisation à l'excitation et à la détection, comme cela est détaillé par la suite.

Le trajet du faisceau se décompose comme suit :

- En excitation, le faisceau traverse deux éléments polarisants : un polariseur de Glan Taylor et une lame à retard de phase variable. Il est ensuite réfléchi

par deux lames de verre épaisses en direction de l'échantillon. L'intensité lumineuse arrivant sur l'échantillon représente donc seulement 0.16% de l'intensité incidente. Le faisceau est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de grande ouverture numérique ($O.N=0.65$).

Le spot ainsi obtenu, d'un diamètre de $1\mu\text{m}$, permet d'exciter une dizaine de boîtes quantiques, compte tenu de la densité des échantillons étudiés (de l'ordre de 10^9 boîtes par cm^2), avec une densité de puissance élevée ($\sim 10\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$). L'échantillon est placé sur trois moteurs piezo-électriques grâce auxquels nous pouvons ajuster sa position avec une précision nanométrique ($\delta r \sim 10\text{ nm}$).

- En détection, la partie principale du signal de luminescence est transmise par deux lames de verre, dont le facteur de transmission global est de 84%. Le faisceau traverse ensuite deux nouveaux éléments polarisants : un polariseur de Glan-Taylor et une lame à retard de phase variable. Enfin, le signal est collecté par une fibre monomode et transmis au monochromateur qui permet de discriminer spectralement le signal issu des boîtes quantiques avec une résolution de $140\mu\text{eV}$. Il est associé à un détecteur à couplage de charge CCD qui est refroidi à l'azote liquide. De cette façon, le courant d'obscurité chute et nous obtenons un meilleur rapport signal sur bruit (le bruit noir se réduit à une dizaine de photoélectrons par pixel et par heure).

Une partie minime de la lumière émise par l'échantillon est réfléchi vers une caméra CCD, qui est utilisée pour centrer et aligner les faisceaux en excitation et en détection en début d'expérience.

La géométrie confocale qui est adoptée présente l'intérêt de conjuguer le diaphragme de détection, qui est ici le coeur de la fibre monomode de collection, au point de focalisation sur l'échantillon et au diaphragme d'excitation. Ainsi, seule la lumière issue du point focal sur l'échantillon est transmise au système de détection. D'autre part, le compromis qui est fait entre résolution spatiale et spectrale permet de réaliser des études de photoluminescence sur boîte quantique unique.

Des lames à cristaux liquides à retard de phase variable ont été introduites sur les voies d'excitation et de détection du microscope. De cette façon, nous pouvons choisir l'état de polarisation de la lumière sur chacune des voies. Dans les expériences de pompage optique orienté, c'est en effet l'analyse des composantes polarisées de la luminescence qui permet l'étude de la dynamique de spin des porteurs photogénérés.

L'introduction d'éléments polarisants impose un agencement très particulier des lames de verre en excitation et en détection :

- Avant d'être focalisé sur l'échantillon, le faisceau se réfléchit sur deux lames de verre épaisses. Or, le coefficient de réflexion sur les lames de verre varie en fonction de la polarisation de l'onde incidente [55]. Selon que celle-ci est polarisée dans le plan d'incidence (*polarisation p*) ou perpendiculairement à celui-ci (*polarisation s*), on aura une différence de réflectivité (et de transmission) en amplitude qui introduit une erreur systématique sur la polarisation de l'onde après réflexion (ou transmission).

Afin de corriger les erreurs d'ellipticité, les deux lames de verre ont été placées l'une à la suite de l'autre et tournées de $\frac{\pi}{2}$ l'une par rapport à l'autre sur le bras d'excitation, de sorte que les composantes polarisées *s* ou *p* subissent les mêmes effets.

La Figure 2.2 présente l'agencement particulier des deux lames de verres sur la voie d'excitation du microscope :

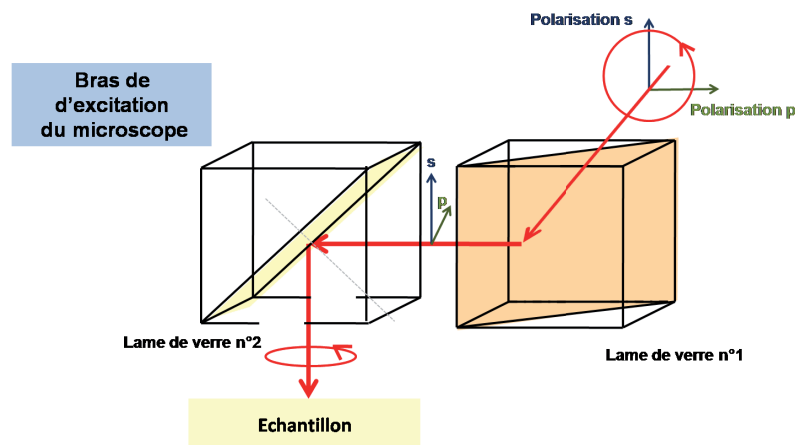


FIGURE 2.2 – Sur la voie d'excitation du microscope, les deux lames séparatrices ont été placées l'une à la suite de l'autre et tournées l'une par rapport à l'autre d'un angle de $\frac{\pi}{2}$. Chaque faisceau rencontre ainsi un nombre identique de lames séparatrices en configuration *s* et en configuration *p*.

- D'autre part, la traversée d'une lame séparatrice épaisse décale latéralement le faisceau de détection. C'est pourquoi les deux lames de verre placées sur la voie de détection sont translatées l'une par rapport à l'autre de façon appropriée afin de tenir compte de cette différence de chemin optique.

La Figure 2.3 représente le décalage latéral du faisceau en détection induit par la traversée des deux lames de verres :

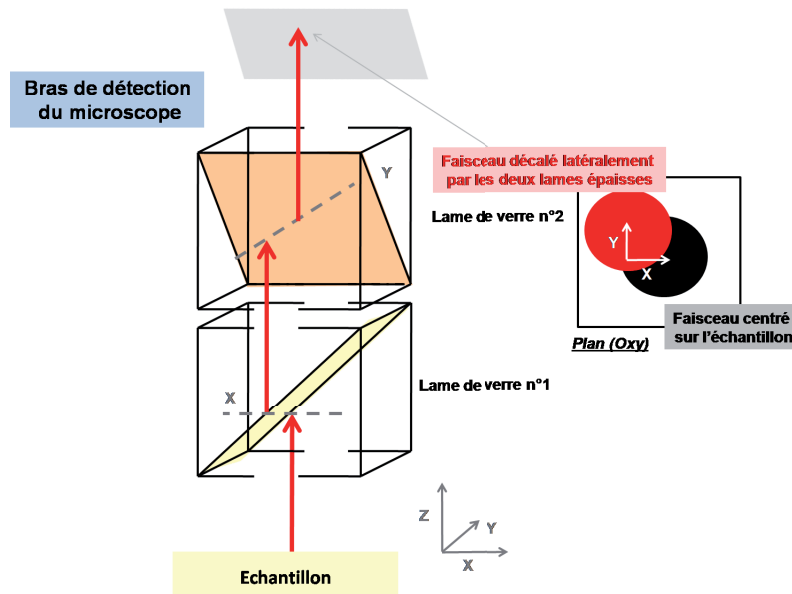


FIGURE 2.3 – Position des deux lames de verre sur la voie de détection du microscope. Le bloc de détection du microscope est décalé latéralement afin de compenser la différence de chemin optique due à la traversée des deux lames épaisses.

C'est grâce à cette géométrie complexe que nous avons pu réaliser des expériences sur boîte quantique unique *résolues en polarisation* à l'excitation et à la détection.

La source d'excitation est choisie en fonction de l'expérience. Cela peut être un oscillateur Ti :Sa impulsif ou continu, ou encore une diode laser à cavité étendue. Nous les décrivons dans le paragraphe 2.1.2.

L'échantillon et les moteurs peuvent être insérés dans une bobine supraconductrice *Cryogenic* qui permet de modifier la température de travail (jusqu'à 1.5K) et le champ magnétique longitudinal (jusqu'à 12 Teslas), ou dans un simple bidon d'hélium. Les études sur les boîtes quantiques nécessitent en effet de travailler à des températures très basses (4K) afin de limiter certains processus de déphasage, comme les interactions avec les phonons. L'introduction d'un champ magnétique permet entre autres d'étudier les effets nucléaires.

Il s'agit donc d'un dispositif flexible, dans lequel différents paramètres expéri-

mentaux peuvent être choisis en fonction des besoins (température de travail, champ magnétique, polarisation de la lumière à l'excitation et à la détection).

Néanmoins, ce microscope n'est pas optimisé pour des études sous excitation quasi-résonante. Nous arrivons à détecter le signal de boîte quantique en excitant à un phonon LO (~ 35 meV) de la transition X^+ , comme le montre la Figure 2.4. Il est impossible de s'approcher plus près spectralement, car le signal de diffusion du laser devient trop fort et aveugle notre détection.

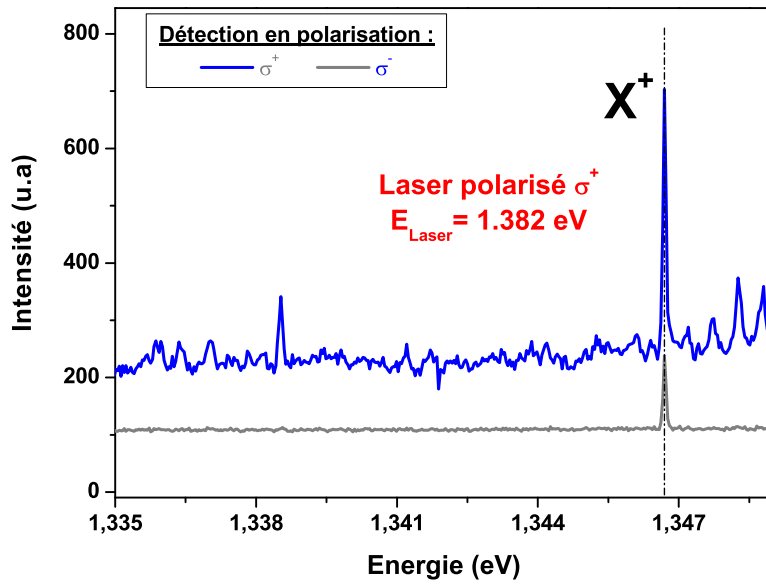


FIGURE 2.4 – Spectre obtenu en excitant à 1 phonon LO (~ 35 meV) de la transition X^+ à l'aide du laser Ti :Sa continu. $E_{\text{Laser}} = 1.3818$ eV et $E_{X^+} = 1.3467$ eV. Nous constatons que lorsque la polarisation du laser et la polarisation de l'analyseur de détection sont identiques, le signal de diffusion parasite du laser commence à être gênant.

Nous verrons dans le paragraphe 2.2 les modifications qui ont été apportées à la tête de microscope afin d'exciter et de détecter de façon *quasi-résonante*.

2.1.2 Les sources d'excitation

Nous présentons ici les différentes sources d'excitation que nous avons utilisées.

2.1.2.1 L'oscillateur Ti :Sa

L'une des sources d'excitation de la chaîne de mesure est un oscillateur Titane-Saphir impulsif. Le milieu amplificateur de ce laser est un cristal de saphir dopé avec des ions de titane ($Al_2O_3 :Ti$). Il est pompé optiquement par un laser VERDI V-10 commercialisé par la société Coherent (puissance : 10W, longueur d'onde 532 nm).

Ce laser délivre des impulsions d'une durée à mi-hauteur de ~ 3 ps, ce qui correspond à une largeur spectrale à mi-hauteur de ~ 0.59 meV (pour des impulsions limitées par la transformée de Fourier). Il est accordable en longueur d'onde de 700 nm à 950 nm. Le spectre de ce laser est présenté sur la Figure 2.5.

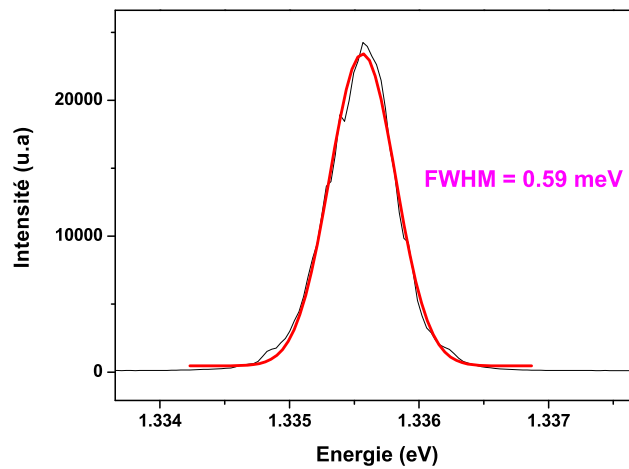


FIGURE 2.5 – Spectre typique de l'oscillateur Ti :Sa. L'ajustement gaussien réalisé donne une largeur spectrale de 0.59 meV.

2.1.2.2 Le laser Ti :Sa continu

Un laser Ti :Sa continu pompé optiquement avec le même type de laser de pompe que son analogue impulsif peut également être utilisé. Il fonctionne sur la même gamme spectrale et peut délivrer une puissance maximale de 1,8W. Il possède une largeur spectrale fine de 10 GHz environ (soit 40 μ eV).

2.1.2.3 La diode à cavité étendue

Les différentes sources décrites précédemment ne permettent pas d'adresser précisément une transition de boîte quantique unique. Nous disposons pour cela d'une diode laser à cavité étendue en configuration Littrow [56] commercialisée par la société Sacher Lasertechnik, pouvant délivrer une puissance maximale de 30 mW. Outre son accordabilité sur une gamme spectrale allant de 910 nm à 980 nm, elle présente l'intérêt de posséder une fine largeur spectrale, de l'ordre de 300 kHz (1.3 neV), ainsi qu'une bonne stabilité en fréquence ($\Delta E < 0,8$ neV).

La Figure 2.6 présente le schéma de principe simplifié d'une diode à cavité étendue. Le réseau de diffraction placé au sein de la cavité est un élément sélectif en longueur d'onde : une partie du faisceau (l'ordre 1) est directement réinjecté dans la diode laser, ce qui contraint la longueur d'onde d'émission, tandis que l'ordre 0 est couplé à l'extérieur de la cavité. L'ordre 0 est donc la sortie utile, tandis que le faisceau réinjecté favorise l'établissement d'un mode longitudinal dominant.

La longueur d'onde d'émission peut être modifiée en effectuant une rotation et une translation simultanée du miroir de sortie de la cavité. Cela peut se faire à l'aide d'un réglage mécanique grossier, ou plus finement à l'aide des moteurs piezo-électriques. Leur précision est de 1.5 GHz par Volt (soit environ $6 \mu\text{eV}/\text{Volts}$). La longueur d'onde de la diode varie également avec la température (~ 20 GHz, soit $80 \mu\text{eV}$ par $^{\circ}\text{C}$), et le courant d'alimentation (~ 0.20 GHz, soit $0.8 \mu\text{eV}$ par mA).

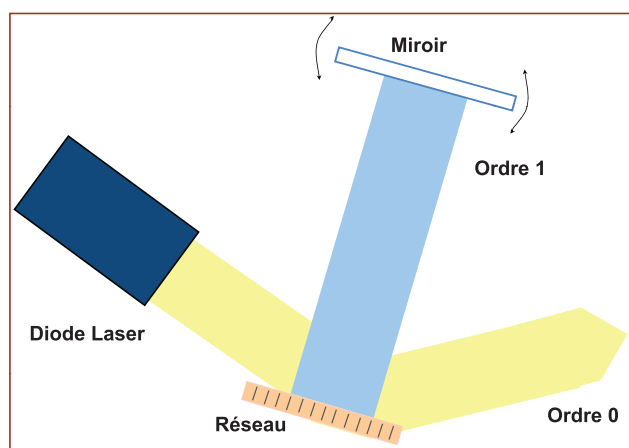


FIGURE 2.6 – Schéma de principe d'une diode à cavité étendue

2.1.3 L'interféromètre de Fabry-Pérot

Afin d'améliorer la résolution spectrale de notre montage, nous avons utilisé un interféromètre de Fabry-Pérot. Les grandeurs caractéristiques de la cavité ont été choisies et caractérisées afin de pouvoir réaliser des études sur boîte quantique unique. Grâce à l'interféromètre, nous avons résolu la structure fine de l'exciton neutre et du trion que nous présentons dans le chapitre 3.

L'interféromètre de Fabry-Pérot utilise le principe des interférences à ondes multiples [55]. Il se compose de deux miroirs M_1 et M_2 dont les faces en regard optiquement planes, parallèles et très réfléchissantes, constituent une lame d'air. Le schéma de principe de la cavité Fabry-Pérot est représenté sur la Figure 2.7. Les faces arrières des deux miroirs sont volontairement légèrement prismatiques, de façon à éviter les réflexions indésirables provenant des surfaces non traitées.

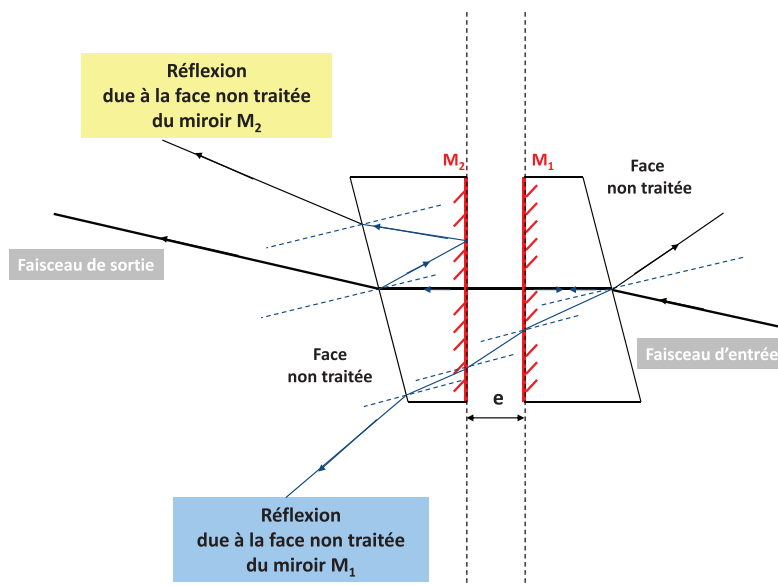


FIGURE 2.7 – Schéma de principe de la cavité Fabry-Pérot. Elle est constituée de deux miroirs M_1 et M_2 , distants d'une épaisseur e . Ils définissent la cavité de l'interféromètre dans laquelle les interférences se produisent. Le revêtement métallique ou diélectrique des deux miroirs permet d'atteindre de hautes réflectivités (99.3% pour notre interféromètre). Le trajet du faisceau est représenté, en exagérant le caractère prismatique des deux lames de verre.

L'interféromètre de Fabry-Pérot est utilisé dans le domaine de la spectroscopie haute résolution, pour les filtres interférentiels des lasers, et également en astronomie [57, 58]. Nous l'utilisons dans notre montage comme filtre spectral.

2.1.3.1 Quelques relations utiles

Nous introduisons ici quelques relations utiles, pour une cavité Fabry-Pérot constituée de deux miroirs M_1 et M_2 , d'épaisseur e , comme celle de la Figure 2.7.

Une onde incidente plane, d'intensité I^0 , polarisée linéairement dans le plan d'incidence, frappe la cavité Fabry-Pérot avec une incidence normale. On note $\mathcal{R}$ et $\mathcal{T}$ les facteurs de réflexion et de transmission en intensité de chaque miroir supposé identique.

Comme les facteurs de réflexion des deux miroirs sont grands, il est nécessaire de tenir compte des différents rayons transmis qui se rencontrent et interfèrent. La figure d'interférence qui en résulte est une fonction d'Airy, dont l'intensité s'écrit :

$$I^{(t)} = \frac{\mathcal{T}^2}{(1 - \mathcal{R})^2 + 4\mathcal{R} \sin^2(\frac{\phi}{2})} I^0 \quad (2.1)$$

Dans cette expression, ϕ représente la différence de phase entre deux ondes successives, et s'écrit :

$$\phi = \frac{4\pi \cdot e}{\lambda_0} \quad (2.2)$$

λ_0 désigne la longueur d'onde dans le vide de la source.

On peut définir l'ordre d'interférence m :

$$m = \frac{\phi}{2\pi} = \frac{2 \cdot e}{\lambda_0} \quad (2.3)$$

Le profil d'intensité présentera un maximum pour des valeurs entières de m et un minimum pour des valeurs demi-entières. Pour une longueur d'onde donnée, il faut donc modifier l'intervalle entre les deux miroirs de la cavité pour faire défiler les modes du Fabry-Pérot.

Nous pouvons réécrire avantageusement la relation 2.1 de la façon suivante :

$$\frac{I^{(t)}}{I^0} = \frac{1}{1 + F \sin^2(\frac{\phi}{2})} \quad (2.4)$$

Où nous définissons le paramètre F , proportionnel à la finesse $\mathcal{F}$ (définie par l'expression 2.12), de la façon suivante :

$$F = \frac{4\mathcal{R}}{(1 - \mathcal{R})^2} \quad (2.5)$$

Il est alors intéressant de dégager deux cas limites :

- Pour des coefficients de réflexion $\mathcal{R}$ faibles, c'est-à-dire pour des valeurs de F faibles, nous pouvons faire un développement limité de l'expression 2.4 :

$$\frac{I^{(t)}}{I^0} \simeq (1 + F \sin^2 \frac{\phi}{2}) = 1 - \frac{F}{2}(1 - \cos \phi) \quad (2.6)$$

On retrouve ici l'expression obtenue dans le cas simple de deux ondes qui interfèrent : les ondes véhiculées par les autres rayons transmis ont une amplitude négligeable.

- En revanche, lorsque $\mathcal{R}$ augmente, l'intensité du minimum chute (lorsque $\phi = (2k+1)\pi$ avec k entier), tandis que les pics correspondants aux différents maxima s'affinent. A partir d'une certaine valeur critique, lorsque $\mathcal{R}$ s'approche de 1, l'intensité de la lumière transmise devient très faible sauf au voisinage immédiat de ces maxima. On observe alors des raies spectrales très fines et très brillantes ($\frac{I^{(t)}}{I^0} = 1$). Nous verrons cependant dans le paragraphe 2.1.3.3, qu'en pratique, un compromis doit être trouvé entre une bonne résolution spectrale et une transmission au pic élevée.

Si la source utilisée est large spectralement, les franges dues à ses différentes composantes spectrales seront séparées dans la courbe de l'intensité transmise à condition que la réflectivité des miroirs soit suffisamment grande. La distribution spectrale de la source peut donc être analysée à l'aide de l'interféromètre.

Le rapport entre la séparation de deux franges adjacentes et leur largeur définit la finesse $\mathcal{F}$, qui est une des grandeurs caractéristiques importantes de l'interféromètre.

L'interféromètre de Fabry-Pérot tel que nous venons de le présenter est en fait très idéalisé. Nous allons corriger la fonction d'Airy obtenue en 2.4 afin de se rapprocher de l'interféromètre de Fabry-Pérot *réel* :

- Tout d'abord, le revêtement des miroirs de la cavité peut absorber une partie de l'énergie, en particulier s'il s'agit d'un revêtement métallique. Dans le cas d'un revêtement diélectrique, ces pertes sont dues essentiellement à des phénomènes de diffusion. Pour tenir compte de cet effet, il nous faut écrire une nouvelle relation de conservation de l'énergie :

$$\mathcal{R} + \mathcal{T} + \mathcal{A} = 1 \quad (2.7)$$

La fonction introduite précédemment (relation 2.4) sera alors modifiée comme suit :

$$\frac{I^{(t)}}{I^0} = \left(1 - \frac{\mathcal{A}}{(1 - \mathcal{R})}\right)^2 \frac{1}{1 + F \sin^2(\frac{\phi}{2})} \quad (2.8)$$

Le rôle joué par l'absorption est donc essentiellement une diminution de l'intensité transmise d'un facteur $(1 - \frac{\mathcal{A}}{(1 - \mathcal{R})})^{-2}$.

- Ensuite, la phase en réflexion sera modifiée d'un facteur qui sera différent de 0 ou π . En considérant que les revêtements des deux miroirs de la cavité sont identiques, on peut tenir compte de ce facteur de phase supplémentaire, en écrivant :

$$\phi = \frac{4\pi \cdot e \cdot \cos \theta}{\lambda_0} + 2\phi' \quad (2.9)$$

Sous incidence normale, cette phase supplémentaire modifie l'épaisseur optique de l'interféromètre d'un facteur $\phi' \frac{\lambda_0}{2\pi}$, et donc l'intervalle spectral libre que nous définissons au paragraphe suivant. Ceci signifie que l'écart en fréquence entre deux modes successifs de l'interféromètre change.

2.1.3.2 Définition des grandeurs caractéristiques de l'interféromètre de Fabry-Pérot

Un interféromètre de Fabry Pérot peut être caractérisé à l'aide de différents paramètres. Les plus importants sont son intervalle spectral libre, sa finesse, son facteur de transmission au pic et enfin son contraste. Nous les introduisons ici en dégagant leur signification physique.

- Un interféromètre de Fabry-Pérot donne une figure d'interférence répétitive, qui est une fonction d'Airy (relation 2.8). Deux raies spectrales consécutives sont obtenues pour deux valeurs entières successives de l'ordre d'interférence m . L'écart en fréquence entre deux pics successifs est appelé *intervalle spectral libre* (ISL).

L'ordre d'interférence m peut être réécrit à partir de la relation 2.3 en fonction de la fréquence ν . Nous pouvons alors définir la fréquence ν_m associée à l'ordre d'interférence m :

$$\nu_m = m \cdot \left(\frac{c}{2.e} \right) \quad (2.10)$$

L'intervalle spectral libre (ISL) vaut donc :

$$\Delta\nu_{ISL} = \frac{c}{2.e} \quad (2.11)$$

Il définit la bande passante de l'appareil. En particulier, il montre qu'il existe une limitation dans le filtrage spectral, qui dépend de l'écart entre les deux miroirs de la cavité.

Si la largeur spectrale de la source utilisée est supérieure à l'intervalle spectral libre, il sera nécessaire d'utiliser un filtre supplémentaire. Dans notre expérience, c'est le monochromateur de la chaîne de détection, d'une résolution de $140\mu\text{eV}$ qui joue ce rôle. On aurait pu également monter en série plusieurs cavités Fabry-Pérot, en choisissant pour chacune d'entre elles un intervalle spectral libre différent [59]. Toutefois, en raison de la difficulté de l'alignement et d'une perte considérable de transmission, cette dernière solution n'est pas idéale.

- La finesse $\mathcal{F}$ a été définie précédemment comme le rapport entre la séparation de deux franges adjacentes et leur largeur à mi-hauteur. Elle peut s'exprimer en fonction de l'intervalle spectral libre $\Delta\nu_{ISL}$ que nous venons d'introduire et de la largeur spectrale à mi-hauteur des franges $\delta\nu$:

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta\nu_{ISL}}{\delta\nu} \quad (2.12)$$

On peut également utiliser les relations 2.4 et 2.12 pour définir la finesse en fonction de la réflectivité des miroirs :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{F}}{2} = \frac{\pi\sqrt{\mathcal{R}}}{1 - \mathcal{R}} \quad (2.13)$$

La mesure de la finesse permet d'évaluer la capacité de l'interféromètre à séparer deux composantes spectrales. Elle peut être vue comme le nombre effectif de rayons qui interfèrent au sein de la cavité. Telle que nous venons de la définir, elle est souvent appelée *finesse de réflectivité*.

Il s'agit ici d'une finesse *théorique* qui dépend uniquement du facteur de réflectivité des miroirs. Elle ne permet pas de connaître la résolution réelle de l'appareil dans nos expériences. Il faut pour cela tenir compte de l'alignement imparfait de la cavité, du diamètre finie de la source, dont la distribution angulaire doit être prise en compte¹, et de la planéité imparfaite des miroirs de la cavité.

1. On se ramène alors au cas d'une lame d'air éclairée sous incidence θ , qui donne lieu à l'observation de franges d'égale inclinaison.

La finesse réelle de l'interféromètre ne s'exprime pas de façon littérale. On peut toutefois l'évaluer de façon approchée [60, 61, 62].

On peut définir une finesse d'instrument $\mathcal{F}_I$, qui tient compte des défauts de la cavité (défauts de surface, taille finie de la pupille d'entrée, distribution angulaire de la source). La finesse réelle de l'interféromètre (finesse de défaut $\mathcal{F}_D$) s'exprime alors :

$$\left(\frac{1}{\mathcal{F}_D}\right)^2 = \left(\frac{1}{\mathcal{F}_I}\right)^2 + \left(\frac{1}{\mathcal{F}_R}\right)^2 \quad (2.14)$$

où $\mathcal{F}_R$ est la finesse de réflectivité définie par la relation 2.13.

- Un autre paramètre important est le facteur de transmission au pic, défini comme suit :

$$\tau_{pic} = \left(\frac{I^{(t)}}{I^0}\right)_{max} \quad (2.15)$$

D'après la relation 2.8, il vaut :

$$\tau_{pic} = \left(1 - \frac{\mathcal{A}}{(1 - \mathcal{R})}\right)^2 \quad (2.16)$$

Pour que le signal de luminescence issu d'une boîte quantique unique reste détectable après son passage par l'interféromètre, il faut que le facteur de transmission au pic ne soit pas trop faible (compte tenu du fait que la largeur spectrale d'une transition de boîte est du même ordre de grandeur que la largeur de mode de l'interféromètre dans nos expériences). Par exemple, avec une transmission au pic de 10%, le signal obtenu vaudra ~ 100 coups/sec sur notre CCD.

- Le dernier paramètre que nous définissons est le contraste $\mathcal{C}$:

$$\mathcal{C} = \frac{\left(\frac{I^{(t)}}{I^0}\right)_{max}}{\left(\frac{I^{(t)}}{I^0}\right)_{min}} \quad (2.17)$$

La relation entre la finesse $\mathcal{F}$ et le contraste est, d'après 2.8 :

$$\mathcal{C} = 1 + \frac{4\mathcal{F}^2}{\pi^2} \quad (2.18)$$

Plus la finesse est élevée, plus le contraste est bon, et meilleure est la réjection spectrale de l'interféromètre. C'est une donnée d'importance pour des études à quasi-résonance où le signal de diffusion parasite du laser doit être éliminé.

Dans le paragraphe 2.1.3.3, nous évaluons ces différentes grandeurs caractéristiques expérimentalement.

2.1.3.3 Mesure expérimentale des grandeurs caractéristiques de l'interféromètre de Fabry-Pérot

Description de l'interféromètre L'interféromètre de Fabry-Pérot que nous avons utilisé est l'interféromètre RC-110 de la marque Burleigh. Nous l'avons inséré sur la voie de détection de notre montage, à l'entrée du spectromètre, comme le montre la Figure 2.8.

La cavité Fabry-Pérot est montée sur des barreaux de Super-Invar, qui est un alliage fer-nickel de faible coefficient de dilatation thermique. Le premier miroir est fixe, tandis que le second peut être ajusté finement sur trois axes à l'aide d'un réglage mécanique. Une optimisation fine de la position se fait ensuite à l'aide de trois moteurs piezo-électriques, qui peuvent être alimentés séparément. Une rampe de tension peut également être envoyée aux trois moteurs à la fois, ce qui permet de modifier finement la distance entre les miroirs et donc l'intervalle spectral libre. La distance entre les miroirs peut également être ajustée manuellement de façon grossière, de 1 mm à 10 cm.

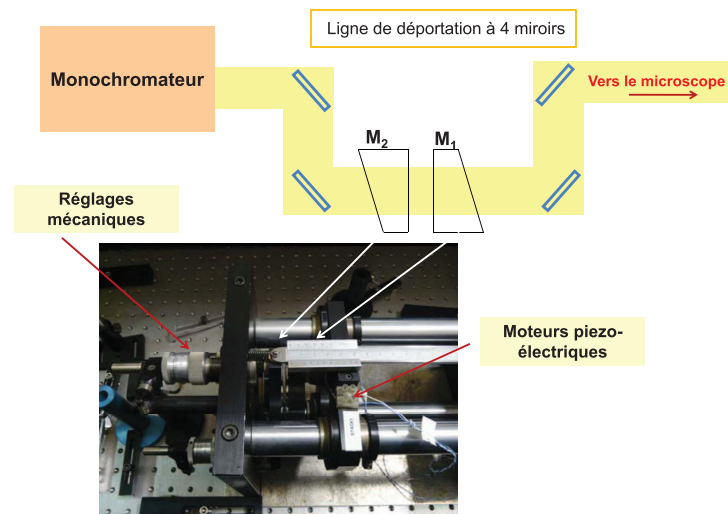


FIGURE 2.8 – L'interféromètre de Fabry-Pérot. Une ligne de déportation à quatre miroirs placée devant le monochromateur permet de régler finement l'orientation du faisceau par rapport à la cavité.

Nous avons équipé cet interféromètre d'un jeu de miroirs fonctionnant de 890 nm à 990 nm, qui est la gamme spectrale d'intérêt pour l'étude des boîtes quantiques de type *InAs/GaAs*. Ces miroirs ont un coefficient de réflectivité de 99.3%, et une planéité de $\frac{\lambda}{200}$. Les données constructeur garantissent une finesse minimale allant de 50 à 150 et un facteur de transmission au pic allant de 10% à 50% pour un faisceau dont le diamètre vaut respectivement 3mm et 40mm. En effet, plus le faisceau est petit, moins il sera sensible à la planéité imparfaite des miroirs, et plus la finesse atteinte sera grande. Afin de garantir une bonne adaptation à l'ouverture numérique du monochromateur, qui vaut 0.06, le diamètre du faisceau collimaté dans notre montage a un diamètre de 6mm.

Pour aligner la cavité, on commence par régler l'orientation du faisceau par rapport à celle-ci, par auto-collimation sur le premier miroir. Ensuite, les deux miroirs de la cavité sont ajustés l'un par rapport à l'autre de manière à les rendre parfaitement parallèles. L'alignement se fait alors en plusieurs étapes :

- Un premier réglage grossier peut être réalisé à l'aide d'un laser continu de type He-Ne. Lorsque la cavité est bien réglée, elle doit transmettre un faisceau unique, comme cela est présenté sur la Figure 2.9. Un alignement imparfait se traduit par la formation de plusieurs taches : elles correspondent aux réflexions

successives sur les miroirs qui ne sont pas parfaitement parallèles.

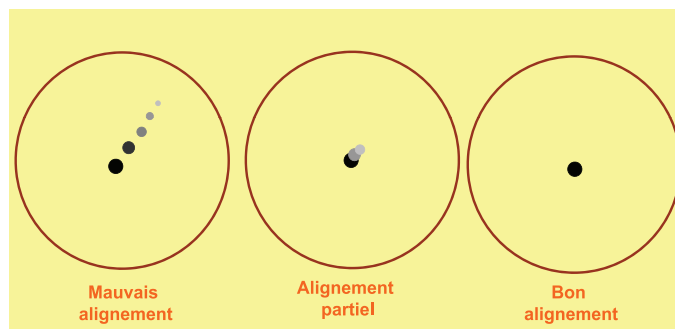


FIGURE 2.9 – Principe d'alignement de la cavité à l'aide d'un faisceau laser de petit diamètre dans le domaine visible.

- On éclaire ensuite les miroirs à l'aide d'un faisceau de grand diamètre issu d'une source adaptée à la gamme spectrale des miroirs. La distribution angulaire de la source conduit alors à la formation de franges d'égale inclinaison. Le réglage de la cavité est optimisé en minimisant le nombre de franges observées jusqu'à l'obtention de la teinte plate.
- Finalement, en envoyant une rampe de tension aux trois moteurs piezo-électriques, on modifie continûment la longueur d'onde passante de l'interféromètre (c'est-à-dire la position du mode). On utilise une source fine spectralement, adaptée à la gamme spectrale des miroirs. Le signal transmis par la cavité est visualisé à l'aide d'un oscilloscope. On observe alors des raies fines, qui correspondent à la tension appliquée aux moteurs pour laquelle la longueur d'onde de la source (qui est fixe) se trouve accordée avec le mode de l'interféromètre. L'alignement est alors optimisé par itération en ajustant l'orientation des miroirs de la ligne de déportation ainsi que la tension appliquée à chaque moteur piezo-électrique séparément. Cela permet d'affiner les raies observées, ce qui revient à maximiser la finesse de l'interféromètre.

Choix des grandeurs caractéristiques La largeur spectrale d'un mode de l'interféromètre $\delta\nu$ doit être suffisamment fine pour résoudre une transition de boîte quantique, dont la largeur spectrale à la limite radiative vaut environ $1\mu\text{eV}$. La valeur de ce minorant théorique dépend uniquement du temps de vie de l'exciton dans l'échantillon. Les mesures expérimentales en transmission sous excitation résonante donnent néanmoins une largeur allant de $2\mu\text{eV}$ [63] à $5\mu\text{eV}$ [64] dans des structures n et p -Schottky à charge ajustable. L'écart par rapport à la limite radiative théorique s'explique par un déplacement spectral de la raie avec le temps (*spectral wandering*).

Afin de remplir ces objectifs, nous devons maximiser la finesse et choisir un intervalle spectral libre en fréquence le plus petit possible. Il faut également avoir un facteur de transmission au pic élevé, de sorte que le signal reste détectable après son passage par l'interféromètre. En pratique, ces différentes grandeurs caractéristiques sont liées les unes aux autres.

Un compromis doit être trouvé entre un facteur de transmission au pic élevé et une finesse élevée, comme le montrent les études réalisées par Dufour et Picca [65] et R.Chabbal [66]. Ils ont montré que la finesse réelle mesurée expérimentalement n'atteignait jamais les valeurs prévues par la théorie. En particulier, lorsque le facteur de réflectivité des miroirs $\mathcal{R}$ se rapproche de 1, la finesse atteint une valeur limite $\mathcal{F}_D$ [55], appelée *finesse de défaut*, décrite par l'expression 2.14, qui tient compte des défauts (planéité et parallélisme imparfaits des miroirs², distribution angulaire et profil spatial des faisceaux).

De plus, plus l'intervalle spectral libre choisi est petit, plus la distance entre les miroirs de la cavité est grande. De ce fait, le faisceau sera plus sensible aux défauts de parallélisme et de planéité des miroirs, et l'alignement sera plus critique. D'autre part, deux modes successifs seront très proches l'un de l'autre : il sera impossible de filtrer complètement une source large spectralement. C'est pourquoi nous avons choisi de travailler avec un intervalle spectral libre suffisamment élevé ($\text{ISL} \sim 280\mu\text{eV}$) pour séparer deux modes successifs de l'interféromètre avec le monochromateur (compte tenu de sa résolution spectrale qui est d'environ $140\mu\text{eV}$).

Nous présentons ici une mesure expérimentale des différentes grandeurs caractéristiques de notre interféromètre.

2. L'intervalle spectral libre de l'interféromètre varie légèrement sur l'étendue des miroirs, de sorte que la finesse n'atteint pas la valeur attendue en théorie.

Mesure expérimentale de l'intervalle spectral libre de l'interféromètre

Pour connaître précisément l'intervalle spectral libre (que nous pouvons évaluer grossièrement en mesurant l'épaisseur optique de l'interféromètre), nous avons utilisé une lampe blanche (large spectralement). Après son passage par l'interféromètre, nous mesurons un spectre cannelé caractéristique à l'aide du monochromateur de détection. Il est présenté sur la Figure 2.10.

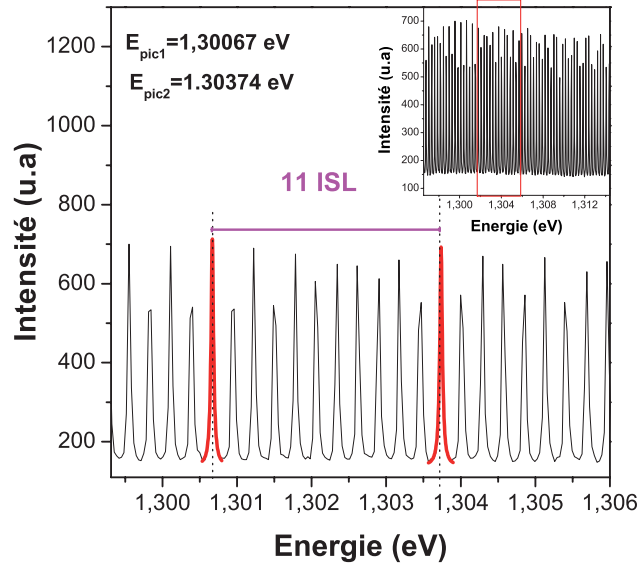


FIGURE 2.10 – Mesure expérimentale de l'intervalle spectral libre de la cavité Fabry-Pérot

Nous pouvons de cette façon évaluer précisément l'intervalle spectral libre de notre interféromètre : pour cela, nous mesurons l'écart entre 12 modes successifs, ce qui permet d'obtenir une valeur moyenne de l'intervalle spectral libre.

Nous trouvons :

$$\Delta\nu_{ISL} = \frac{E_{pic1} - E_{pic2}}{11} = 279\mu eV \quad (2.19)$$

L'intervalle spectral libre mesuré est supérieur à la résolution du monochromateur de $140\mu eV$. Ce dernier pourra donc séparer deux modes successifs de l'interféromètre.

Mesure expérimentale de la finesse de l'interféromètre Nous avons également mesuré la finesse de l'interféromètre, à l'aide d'une diode laser à cavité étendue, d'une largeur spectrale de 1.3neV . La longueur d'onde d'émission de la diode laser est balayée finement, et mesurée à l'aide d'un lambdamètre d'une résolution de 0.1 pm . Le faisceau passe par l'interféromètre, et son spectre est analysé à la sortie à l'aide du monochromateur, puis déconvolué par une lorentzienne. Nous traçons sur la Figure 2.11 l'aire de cette lorentzienne en fonction de la longueur d'onde mesurée.

Nous balayons la longueur d'onde dans les deux sens de façon à s'affranchir des dérives de l'appareil, qui sont discutées dans la suite de ce chapitre. Nous mesurons une largeur de mode de $\delta\nu_{mode}$ allant de $2.7\mu\text{eV}$ à $3.1\mu\text{eV}$, comme le montre la Figure 2.11. Avec la largeur de mode moyenne, qui est de $2.9\mu\text{eV}$, il est a priori possible de résoudre une transition de boîte quantique unique ($\delta\nu_{BQ}=2\text{-}5\mu\text{eV}$). La raie mesurée expérimentalement résultera alors de la convolution de la largeur spectrale de la transition et de la largeur de mode de l'interféromètre.

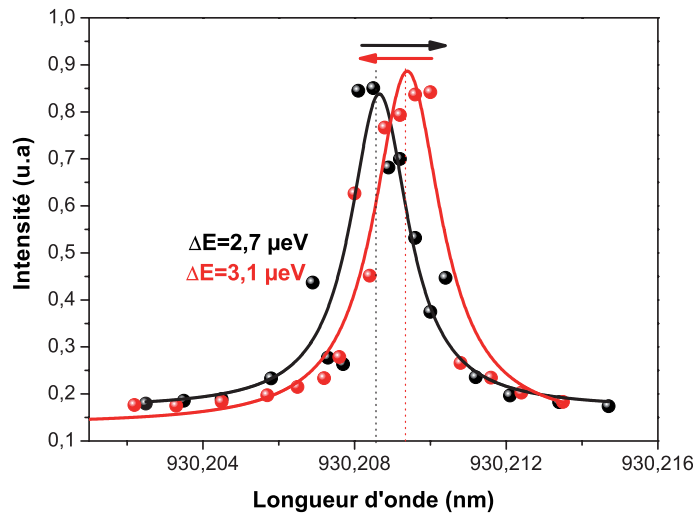


FIGURE 2.11 – *Mesure expérimentale de la finesse de la cavité Fabry-Pérot. Nous obtenons une largeur de mode moyenne de $2.9\mu\text{eV}$.*

Grâce à ces mesures, nous pouvons estimer la finesse de l'interféromètre :

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta\nu_{ISL}}{\delta\nu_{mode}} = 96 \quad (2.20)$$

La valeur expérimentale que nous mesurons correspond à la valeur constructeur, qui

donne une finesse allant de 50 à 150 (pour un faisceau d'un diamètre valant respectivement 3mm à 40mm).

La valeur théorique de la finesse de réflectivité définie par l'équation 2.13 pour notre interféromètre est de 447, compte tenu du coefficient de réflexion des miroirs de 99.3% donné par Burleigh.

Notre valeur expérimentale est éloignée de cette valeur théorique. La valeur constructeur de la réflectivité des miroirs n'est peut-être pas parfaitement exacte. Toutefois, compte tenu de la finesse expérimentale, le coefficient de réflexion réel des miroirs tomberait alors à 97% environ. Cela correspond à une erreur relative élevée de 2,3%.

En réalité, comme cela a été évoqué dans les paragraphes précédents, la mesure expérimentale tient compte des défauts de planéité des miroirs sur l'étendue du faisceau, et de l'imprécision de la méthode d'alignement. Notre mesure permet donc d'évaluer la finesse réelle de l'interféromètre (*finesse de défaut* $\mathcal{F}_D$).

Nous pouvons estimer *de façon approchée* la finesse de défaut $\mathcal{F}_D$ de notre interféromètre en tenant compte *uniquement* des défauts de surface³ :

$$\left(\frac{1}{\mathcal{F}_D}\right)^2 = \left(\frac{1}{\mathcal{F}_S}\right)^2 + \left(\frac{1}{\mathcal{F}_R}\right)^2 \quad (2.21)$$

où $\mathcal{F}_R$ est la *finesse de réflectivité* et $\mathcal{F}_S$ est la *finesse de surface* qui tient compte des défauts de planéité des miroirs de la cavité, et s'exprime :

$$\mathcal{F}_S = \frac{m}{2} \quad \text{pour un miroir de planéité } \frac{\lambda}{m} \quad (2.22)$$

La finesse de défaut théorique $\mathcal{F}_D$ de notre interféromètre vaut 99 avec $m=200$ (données constructeur). Cette valeur est en bon accord avec la finesse de 96 mesurée expérimentalement (relation 2.20).

Enfin, le facteur de transmission au pic mesuré expérimentalement vaut 10% : le signal de photoluminescence de boîte reste détectable après son passage par l'interféromètre.

3. Les miroirs de l'interféromètre ont une planéité de $\frac{\lambda}{200}$.

Interfaçage de l'interféromètre Afin d'utiliser l'interféromètre dans nos expériences, nous avons utilisé un programme d'interfaçage Labview. L'état de polarisation de la lumière en excitation et en détection est contrôlé par des lames à retard de phase variable, pilotées électriquement. A l'aide du programme, pour chaque valeur de tension des lames en excitation et en détection, c'est-à-dire pour chaque état de polarisation de la lumière, nous pouvons modifier la tension appliquée aux moteurs piezo-électriques du second miroir de la cavité avec un pas contrôlé. L'intervalle spectral libre de l'interféromètre est différent pour chaque valeur de tension appliquée aux moteurs. La longueur d'onde passante de l'interféromètre est ainsi modifiée continûment. Nous "scannons" de cette façon la transition issue d'une boîte quantique unique.

La lumière transmise par la cavité est analysée par le monochromateur dont la résolution de $140\mu\text{eV}$ est insuffisante pour résoudre la transition de boîte. Nous utilisons donc une déconvolution lorentzienne de la raie de boîte : nous traçons l'aire de la lorentzienne obtenue en fonction de la tension appliquée aux moteurs piezo-électriques. Cette technique nous permet d'analyser finement la transition. La résolution atteinte est limitée par la largeur de mode du Fabry-Pérot ($\delta\nu \sim 3\mu\text{eV}$).

Reste le problème de la calibration de l'axe des tensions en longueur d'onde. Nous avons pour cela mesuré l'écart de tension nécessaire pour parcourir un intervalle spectral libre, dont nous connaissons la valeur expérimentale⁴. Nous faisons ensuite une correspondance entre la longueur d'onde de la boîte quantique (mesurée à l'aide du monochromateur sans l'interféromètre) et la tension passante, qui correspond à la tension pour laquelle l'aire de la lorentzienne est maximale.

4. Cela nous a permis d'évaluer la course des moteurs à 1.4nm/V , en accord avec la documentation Burleigh qui donne 1.7nm/V .

Problèmes rencontrés et perspectives Nous avons constaté une dérive linéaire importante de la position du mode du Fabry-Pérot avec le temps, comme le montre la Figure 2.12. On constate en effet que la tension des moteurs pour laquelle le mode du Fabry-Pérot est accordé avec la transition laser supposée fixe diminue au cours du temps⁵. La pente de la dérive que nous mesurons est de 4.29 mV/minute, ce qui correspond à un déplacement du mode du Fabry-Pérot de $0.4\mu\text{eV}/\text{minute}$.

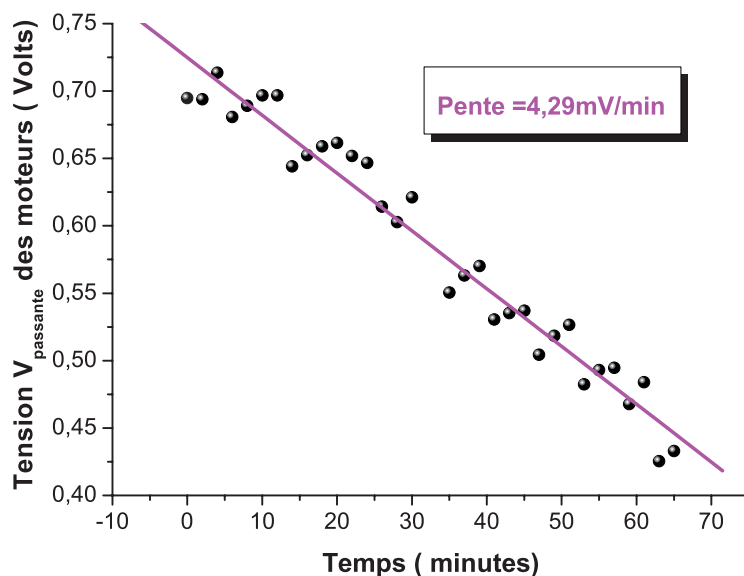


FIGURE 2.12 – Mesure des dérives temporelles de positions du mode du Fabry-Pérot. $V_{passante}$ désigne la tension des moteurs pour laquelle le mode du Fabry-Pérot est accordé avec la transition laser (supposée fixe).

Il est donc nécessaire, pour que nos mesures soient pertinentes, de les faire pendant un temps court, ce qui n'est pas toujours réalisable compte tenu du faible niveau de signal dont nous disposons. Dans les expériences décrites dans le chapitre 3, nous mettons en évidence la structure fine de différents complexes excitoniques. Les mesures sont effectuées en 10 minutes par spectre : nous pouvons donc considérer que nous avons une dérive du mode du Fabry-Pérot de $4\mu\text{eV}$ pendant la mesure.

Ce problème est donc gênant dès lors qu'on veut connaître avec précision l'écart énergétique entre deux transitions excitoniques. L'origine de ces dérives est encore discutée. Elles peuvent s'expliquer par une instabilité thermique ou mécanique.

5. Cela signifie que l'écart entre les deux miroirs de la cavité évolue au cours du temps.

Pour combattre ce problème, il est nécessaire de contre-réagir sur la tension appliquée aux moteurs piezo-électriques. Nous pourrions par exemple utiliser une source auxiliaire qui serait à la fois fine et stable spectralement. Elle permettrait de réajuster la position du mode en continu grâce à un asservissement sur les moteurs piezo-électriques [67].

Conclusion Afin de réaliser des expériences sous excitation quasi-résonante, nous avons modifié le microscope (cf paragraphe 2.2) : la réjection du signal de réflexion et de diffusion parasite du laser est de cette façon considérablement améliorée. L'interféromètre pourrait être inséré dans ce nouveau dispositif expérimental qui gagnerait ainsi en résolution spectrale ($\delta\nu \sim 3\mu\text{eV}$).

2.2 Vers une excitation résonante...

L'implémentation d'un schéma de contrôle sur un système en phase condensée nécessite la mise en forme d'impulsions lumineuses avec des caractéristiques (longueur d'onde, polarisation, largeur temporelle et spectrale) adaptées au système étudié, c'est-à-dire dans notre cas à la boîte quantique semiconductrice de type InAs/GaAs. La première difficulté technique pour la réalisation de nos expériences est donc la nécessité de travailler sous excitation quasi-résonante. Concrètement, dans notre dispositif, cela signifie que nous devons discriminer le signal de luminescence d'une boîte quantique unique du signal de réflexion et de diffusion parasite du laser d'excitation.

Plusieurs configurations existent à ce jour pour détecter le signal issu d'une boîte quantique unique sous excitation résonante. Le signal peut être mesuré électriquement (*photocourant*) dans des échantillons où les boîtes sont insérées dans la partie intrinsèque d'une jonction PIN polarisée en inverse [68], ou encore en transmission [69]. Des techniques de type pompe-sonde sont également utilisées [1].

En revanche, la détection à résonance de la luminescence d'une boîte quantique unique n'avait encore jamais été réalisée expérimentalement avant le début de cette thèse. Des résultats probants ont été obtenus en 2007 (et 2008) dans des échantillons de boîtes quantiques possédant une structure particulière de type guide d'onde [70, 71] : dans ce type de structure, l'excitation se fait par la tranche, et la détection est de cette façon discriminée spatialement. Très récemment, l'équipe de Mete Atatüre a mis en évidence le triplet de Mollow en fluorescence à l'aide d'un interféromètre de Fabry-Pérot inséré dans un dispositif comparable au nôtre [72].

Nous avons choisi de développer une nouvelle tête de microscope pour exciter et détecter la luminescence de façon quasi-résonante. Chaque élément optique qui la compose a été choisi afin d'assurer une réjection maximale du signal de diffusion parasite du laser. Parallèlement, des outils de façonnage d'impulsions simples comme *une ligne à dispersion nulle* et un *étireur à réseaux* ont été développés. Nous détaillons dans cette partie ces différents dispositifs.

2.2.1 Une nouvelle tête de microscope pour une excitation résonante

Chaque élément de la nouvelle tête de microscope a été optimisé de sorte que le maximum de signal parasite du laser d'excitation soit réjecté :

- Il s'agit tout d'abord d'une réjection *en polarisation*. Les lames à retard de phase variable permettent d'atteindre des taux de réjection de 10^3 seulement. Elles ont donc été supprimées pour ne laisser que les deux polariseurs de Glan-Taylor en excitation et en détection. Ils permettent d'atteindre un taux de réjection de 10^5 . Une lame quart d'onde ajustable en rotation a également été ajoutée sur la voie de détection. Elle permet de compenser la modification de la polarisation de la lumière (initialement linéairement polarisée) qui peut intervenir du fait de la diffusion à la surface de l'échantillon.
- Par ailleurs, le signal de réflexion parasite du laser est réjecté *spatialement* grâce à des techniques de microscopie en champ sombre. Un obstacle circulaire de 2mm de diamètre en excitation est conjugué avec un diaphragme en détection. Le diamètre de 2mm qui a été choisi ici relève d'un compromis entre la puissance d'excitation et la lumière détectée. Il correspond en effet à une transmission de 36% de la lumière en excitation et de 46% en détection. Ces facteurs ont été mesurés expérimentalement. Ils sont cohérents avec les calculs théoriques réalisés en considérant un faisceau de profil spatial gaussien.

Parallèlement, nous avons optimisé la puissance d'excitation.

En effet :

- Nous avons utilisé des fibres à maintien de polarisation pour acheminer le signal en excitation et en détection. Elles permettent d'optimiser la transmission et la détection de nos signaux polarisés.
- De plus, nous avons modifié la géométrie de la tête de microscope. Les trois lames de verre ont été remplacées par deux cubes non polarisants, dont le facteur de réflexion donné par le constructeur est de 10%. Notre mesure expérimentale donne un facteur de réflexion réel de seulement 5% , à comparer au 0.16% de la tête de microscope des études hors résonance. Le facteur de

transmission de la lumière détectée est de 81%, du même ordre de grandeur que précédemment.

Cette géométrie est plus simple, mais moins flexible que la précédente : ici, la polarisation de la lumière est fixée en excitation et en détection. La lumière incidente est polarisée linéairement dans le plan d'incidence, repéré par rapport à la surface $\mathcal{S}$ séparant le cube 1 en deux prismes (polarisation p).

Le schéma détaillé de la nouvelle tête de microscope est présenté sur la Figure 2.13. Dans toutes les expériences décrites dans ce manuscrit, le cryostat est un simple bidon d'hélium permettant de travailler à une température de 4K.

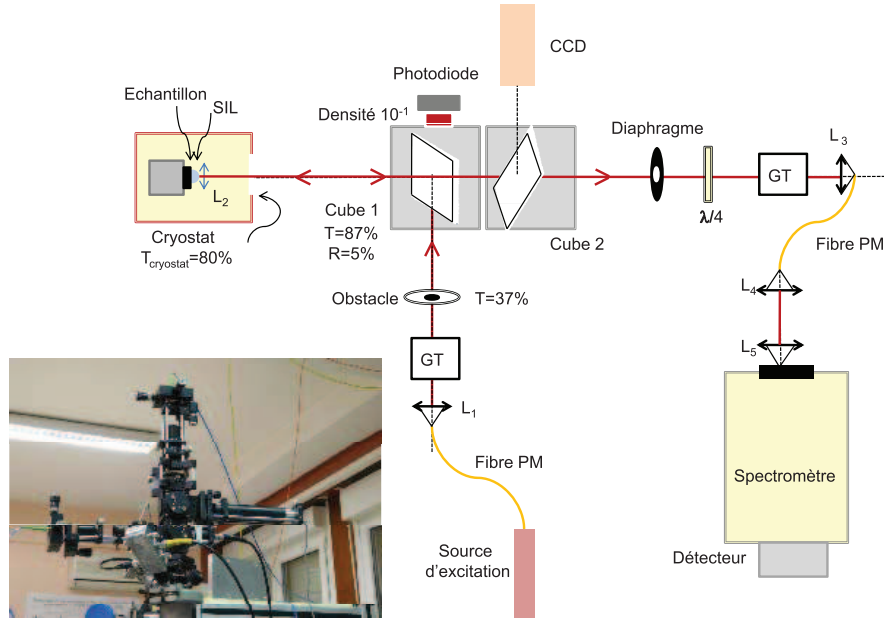


FIGURE 2.13 – Schéma détaillé de la nouvelle tête de microscope. Les caractéristiques techniques des différents éléments qui la composent sont précisées dans le Tableau 2.1 ci-dessous. Les sources d'excitation disponibles sont décrites dans le paragraphe 2.1.2. Les caractéristiques des échantillons sont présentées en introduction des chapitres 3 et 4.

Nous présentons dans le Tableau 2.1 les caractéristiques techniques des éléments de la tête de microscope de la Figure 2.13.

Elément	Caractéristiques techniques	Référence commerciale
Spectromètre	$f' = 0.5\text{m}$ Réseau 2000 traits/mm	<i>Acton Research Corporation</i> <i>Spectra Pro 500i</i>
Fibre PM	Fibre à maintien de polarisation O.N=0,12, MFD = $6.6\text{ }\mu\text{m}$ $\lambda_c = 920\text{ nm} \pm 50\text{ nm}$	<i>Thorlabs</i> <i>Fibre monomode</i> P3-980PM-FC-5
Détecteur	CCD 1340x100 pixels refroidie à l'azote	<i>Princeton Instruments</i> Spec-10 :100 BR/LN
Diaphragme de détection	Diamètre réglable $\phi = 1\text{mm}-12\text{mm}$	<i>Thorlabs</i> SM1D12C
Obstacle en excitation	$\phi = 2\text{ mm}$	Fabrication maison
Cube n°1 et n°2	Cubes non polarisants 700-1100nm, R=10%	<i>Melles Griot</i> BSC-700-1000-10-100
Lame $\frac{\lambda}{4}$	Lame $\frac{\lambda}{4}$ achromatique 690nm-1200nm	<i>Thorlabs</i> AQWP05M-950
Densité	Densité optique T=10%	<i>Thorlabs</i> ND10-B
Photodiode	Photodiode en silicium $\eta = 0.6\text{ A/W}$	<i>Thorlabs</i> FDS 1010 Si
GL	Polariseur de Glan-Taylor Taux d'extinction 10^5	<i>Thorlabs</i> GL10-B
L_1	Lentille asphérique $\phi = 5\text{ mm}$, $\lambda = 600\text{-}1050\text{ nm}$ $f' = 15.29\text{ mm}$, O.N=0.16	<i>Thorlabs</i> C260 TME-B
L_2	Lentille asphérique $\phi = 3.6\text{ mm}$, $\lambda = 600\text{-}1050\text{ nm}$ $f' = 2.75\text{ mm}$, O.N=0.65	<i>Thorlabs</i> C390 TME-B
L_3	Lentille asphérique $\phi = 5.5\text{ mm}$, $\lambda = 600\text{-}1050\text{ nm}$ $f' = 18.4\text{ mm}$, O.N=0.15	<i>Thorlabs</i> C280 TME-B
L_4	Doublet achromatique $\phi = 25.4\text{ mm}$, $\lambda = 600\text{-}1050\text{ nm}$ $f' = 50\text{ mm}$	<i>Thorlabs</i> AC254-050-B
SIL	Lentille solide à immersion (hémisphérique non traitée) R = 1 mm, matériau ZrO_2	<i>A.W.I Industries</i> E14571

TABLE 2.1 – *Caractéristiques techniques et références commerciales des différents éléments qui composent la nouvelle tête de microscope.*

Afin de connaître la puissance envoyée à l'échantillon, nous avons placé une photodiode après le premier cube séparateur. Elle est volontairement inclinée afin d'éviter un retour du signal de réflexion du laser dans la chaîne de détection. Chaque élément de la tête de microscope a ensuite été calibré comme le montre la Figure 2.13, afin de faire la correspondance la plus exacte qui soit entre la puissance mesurée par la photodiode et la puissance effectivement reçue par l'échantillon.

Nous obtenons un facteur de calibration expérimental κ entre la tension mesurée à la photodiode V_{ph} et la puissance devant l'échantillon P_{ech} de :

$$\kappa = \frac{V_{ph}}{P_{ech}} = 3,48mV/W \quad (2.23)$$

L'irradiance exacte reçue par l'échantillon dépend de la taille de la tache de focalisation sur l'échantillon, dont le diamètre vaut $1\mu m$ environ. Cette valeur varie légèrement d'une expérience à l'autre : nous ne la connaissons donc pas de façon précise.

La procédure d'alignement de la nouvelle tête de microscope est la suivante :

- Tout d'abord, le coeur de la fibre monomode de collection et le diaphragme de détection sont centrés sur l'échantillon.
- Ensuite, le faisceau d'excitation est centré sur l'obstacle.
- Enfin, on règle l'orientation du bras d'excitation et la position des trois moteurs piezo-électriques de façon à exciter la boîte quantique choisie. La taille du diaphragme de détection est également ajustée.

Une optimisation de l'alignement par itération permet d'atteindre de très bons rapports signal sur bruit, comme en témoignent les données expérimentales détaillées par la suite.

Nous présentons par exemple sur la Figure 2.14 un spectre de photoluminescence obtenu sous excitation quasi-résonante. L'énergie du laser d'excitation (Ti :Sa continu) se trouve ici à 1.1 meV de la transition de boîte (*exciton neutre*).

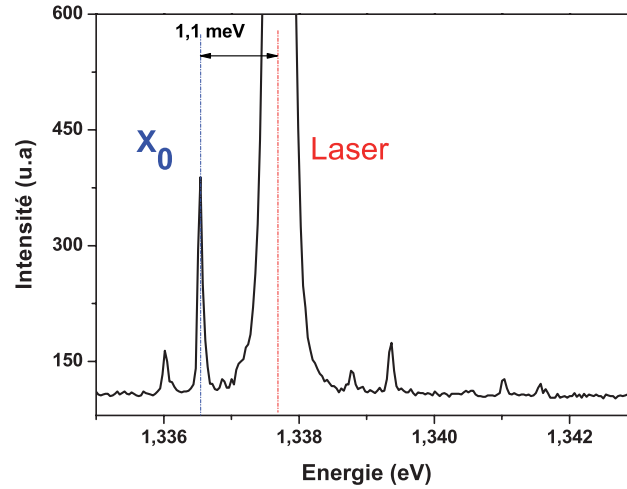


FIGURE 2.14 – Spectre de photoluminescence obtenu en excitant à 1.1meV de la transition X^0 à l'aide du laser Ti :Sa continu. $E_{Laser}=1.3377$ eV et $E_{X0}=1.3366$ eV.

Le spectre de photoluminescence de la Figure 2.15 est obtenu en excitant la transition de l'exciton neutre de façon résonante à l'aide d'une diode laser à cavité étendue. La détection se fait à l'énergie d'émission du trion X^- , à 7 meV de l'exciton. Le principe de ce schéma de détection original est détaillé dans le chapitre 4.

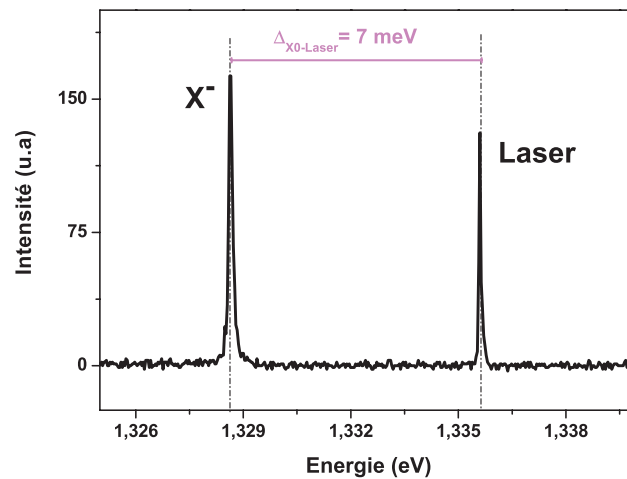


FIGURE 2.15 – Spectre de photoluminescence obtenu en excitant de façon résonante la transition X^0 à l'aide de la diode laser à cavité étendue et en détectant la luminescence à l'énergie d'émission du trion X^- . $E_{Laser}=1.3356$ eV et $E_{X-}=1.3286$ eV. Le signal du laser est d'intensité plus faible que le signal de luminescence de boîte !

Inconvénients de la géométrie en champ sombre La géométrie en champ sombre qui est choisie permet d'éliminer le signal de réflexion du laser spatialement. Elle est indispensable pour la réalisation des expériences sous excitation résonante présentées dans le chapitre 4.

Cette nouvelle géométrie se traduit néanmoins par la modification du profil spatial du faisceau focalisé sur l'échantillon. Cela conduit à une perte d'irradiance considérable, que nous avons évaluée grâce à des simulations sur le logiciel Zemax, et des mesures expérimentales à l'aide d'un analyseur de front d'onde.

Le faisceau est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de grande ouverture numérique ($O.N=0.65$), d'une focale de 2.75 mm. Il mesure environ $1\mu\text{m}$ de diamètre. Des simulations ont été réalisées sous le logiciel Zemax dans les conditions expérimentales (lentille de collimation L_1 et de focalisation L_2 dont les caractéristiques sont données dans le Tableau 2.1). Le profil spatial du faisceau à l'excitation est supposé gaussien.

La Figure 2.16 montre que le profil spatial du faisceau focalisé sur l'échantillon est modifié lorsqu'un obstacle est placé sur le bras d'excitation du microscope.

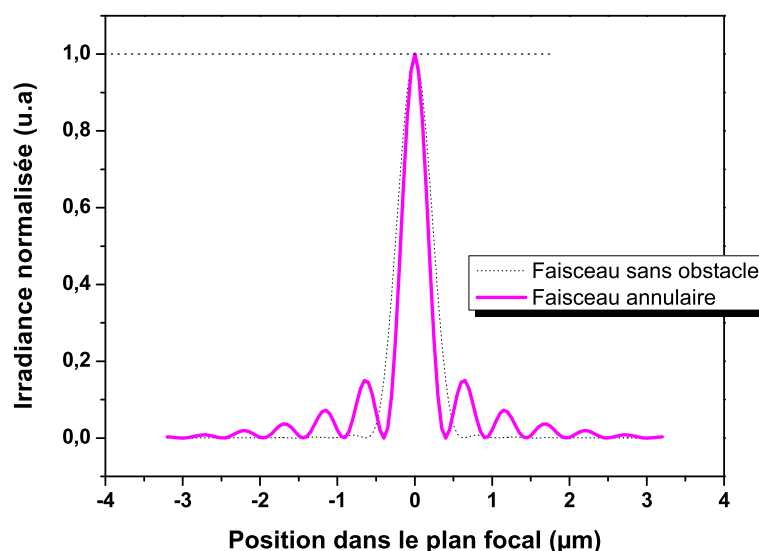


FIGURE 2.16 – Simulation numérique Zemax : Profil spatial du spot sur l'échantillon, dans le plan focal de la lentille de focalisation sur l'échantillon L_2 , dont les caractéristiques sont données dans le Tableau 2.1

L'apparition de ces anneaux dans le plan focal de la lentille pour un faisceau annulaire a pour conséquence une perte d'irradiance sur l'échantillon, car une partie de l'énergie se répartit dans les anneaux complémentaires.

L'énergie encerclée normalisée, obtenue sous le logiciel Zemax, est représentée sur la Figure 2.17. Il s'agit du pourcentage d'énergie présente dans le faisceau, en fonction de la position à laquelle on se place dans le plan focal. En l'absence d'obstacle, l'énergie encerclée normalisée vaut 0.95 pour un rayon de $0.5\ \mu\text{m}$. Cela signifie que la quasi-totalité de l'énergie est concentrée dans un disque de $1\ \mu\text{m}$ de diamètre. En revanche, lorsqu'on place un obstacle sur le bras d'excitation du microscope, seule 20% de l'énergie est présente dans ce même disque. L'énergie se répartit dans les anneaux complémentaires, ce qui explique la forme de *marches d'escalier* de la courbe obtenue.

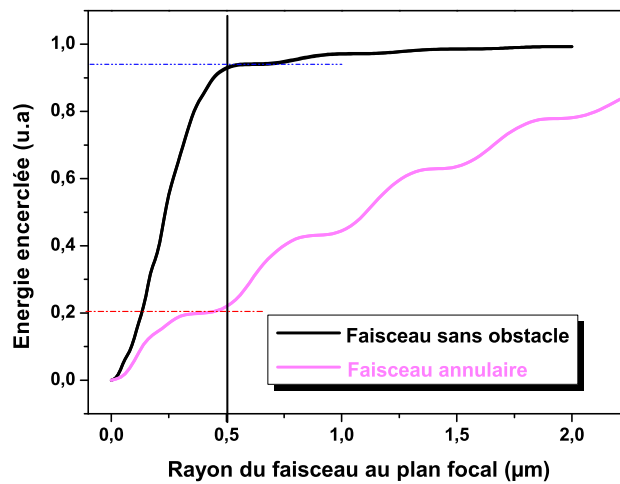


FIGURE 2.17 – Simulation numérique Zemax : Calcul de l'énergie encerclée en présence d'un obstacle sur le bras d'excitation du microscope (géométrie en champ sombre) et en l'absence d'obstacle.

Le facteur de calibration κ du paragraphe 2.2.1 doit être corrigé pour tenir compte de cette déperdition d'énergie. Le nouveau facteur de calibration κ' que nous utiliserons dans nos expériences sera :

$$\kappa' = \frac{\kappa}{5} = 17,5mV/W \quad (2.24)$$

Afin de confirmer les résultats des simulations effectuées sous Zemax, nous avons réalisé des mesures à l'aide d'un analyseur de front d'onde de la marque *Phasics*.

Il s'agit d'un interféromètre à décalage tri-latéral, qui permet d'accéder à la phase et à l'amplitude des ondes portées par les rayons à l'aide d'une mesure interférométrique [73]. L'interféromètre utilise un agrandisseur de faisceau sur l'un de ses deux bras : le principe est alors de faire interférer le faisceau à analyser avec lui-même. Le faisceau agrandi est considéré comme un faisceau de référence, de front d'onde plan.

Nous n'avons pas pu réaliser ces mesures sur la lentille de focalisation L_2 de notre dispositif expérimental pour des raisons techniques. En effet, du fait de son ouverture numérique élevée ($O.N = 0.65$), le faisceau diverge très vite, de sorte que le capteur CCD de l'analyseur de front d'onde, placé à une distance minimale de 1 cm pour un diamètre de 4mm (soit une ouverture numérique de 0.2), ne peut être que très partiellement illuminé. Cela ne permet pas de faire des mesures pertinentes : dans ce cas, seule une petite portion du front d'onde est analysée.

Nous avons donc choisi de travailler avec une lentille d'ouverture numérique plus faible, dont les caractéristiques sont données dans le Tableau 2.2.1 :

Référence commerciale	Thorlabs C280-TME-B
Focale	$f' = 18.4$ mm
Ouverture numérique	$O.N = 0.15$
Diamètre	5.5 mm

TABLE 2.2 – *Caractéristiques techniques de la lentille utilisée avec l'analyseur de front d'onde Phasics*

Les mesures ont été réalisées à l'aide d'une diode laser émettant à 960 nm. A cette longueur d'onde, le rayon du faisceau au plan focal de la lentille vaut environ $4.2\mu\text{m}$ pour un faisceau en entrée d'un rayon de 1.3mm.

L'analyse des données a été faite par *Phasics*, qui a utilisé pour cela une version *R&D* du logiciel d'interfaçage de l'analyseur de front d'onde. Celui-ci permet de gérer des pupilles arbitraires (en particulier des pupilles annulaires). La Figure 2.18 présente le diagramme d'intensité obtenu en présence d'un obstacle de 2mm de diamètre dans le plan perpendiculaire au faisceau d'excitation. La mesure a été faite en arrière du plan focal (le faisceau est alors défocalisé).

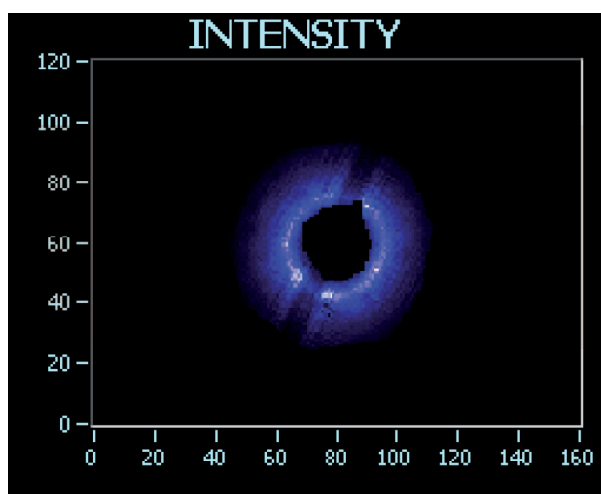


FIGURE 2.18 – Diagramme d'intensité obtenu avec l'analyseur de front d'onde lorsque le faisceau est masqué par un obstacle de diamètre 2mm. Les caractéristiques de la lentille de focalisation utilisée pour cette expérience sont données dans le tableau 2.2.1.

Nous nous sommes uniquement intéressés ici à la mesure de l'intensité, sans considérer les aberrations éventuellement introduites par l'objectif de focalisation. Elles peuvent être évaluées par une mesure de phase. Cependant, compte tenu des faibles dimensions de la boîte quantique en comparaison du faisceau d'excitation, nous avons négligé l'influence de la phase dans les effets que nous étudions dans ce manuscrit.

Une mesure en champ lointain a également été réalisée. En optique gaussienne, cela revient à se placer au plan focal de la lentille. Nous retrouvons la modification spatiale du faisceau dans le plan focal de la lentille prédite par la simulation Zemax.

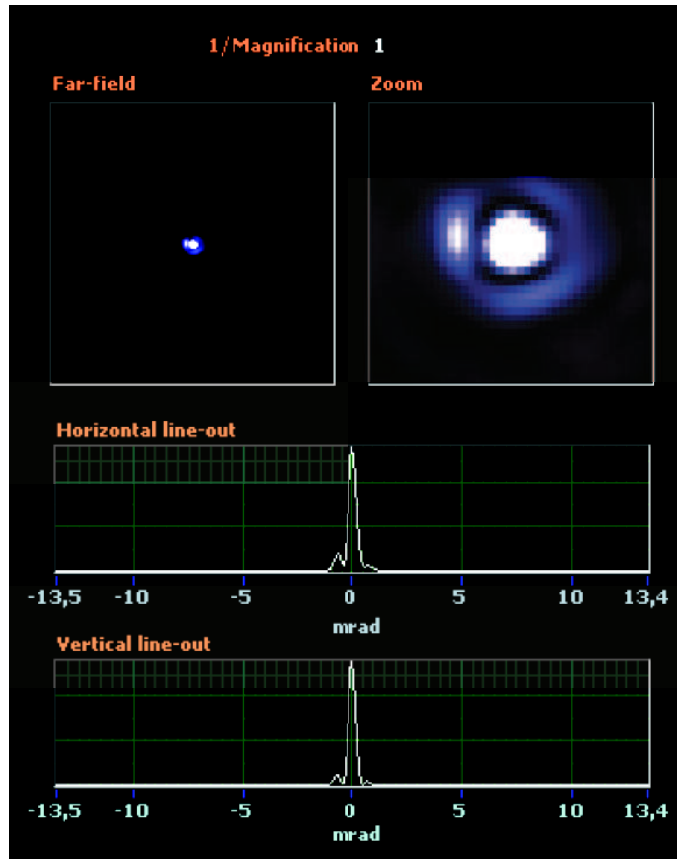


FIGURE 2.19 – Profil spatial du faisceau en champ lointain en présence d'un obstacle de 2mm de diamètre. Nous constatons la formation de deux ailettes complémentaires.

L'énergie encerclée a également été mesurée expérimentalement : cette fois-ci, en l'absence d'obstacle, quasiment toute l'énergie est concentrée dans un disque de $4.2 \mu\text{m}$ de diamètre. En revanche, en présence d'un obstacle, seule 58% de l'énergie est présente dans ce même disque.

Afin de confirmer ces observations, nous avons réalisé une simulation Zemax en se plaçant dans les conditions de l'expérience. Elles sont en bon accord avec les mesures expérimentales : on observe la même forme de *marches d'escalier*, que nous présentons sur la Figure 2.20.

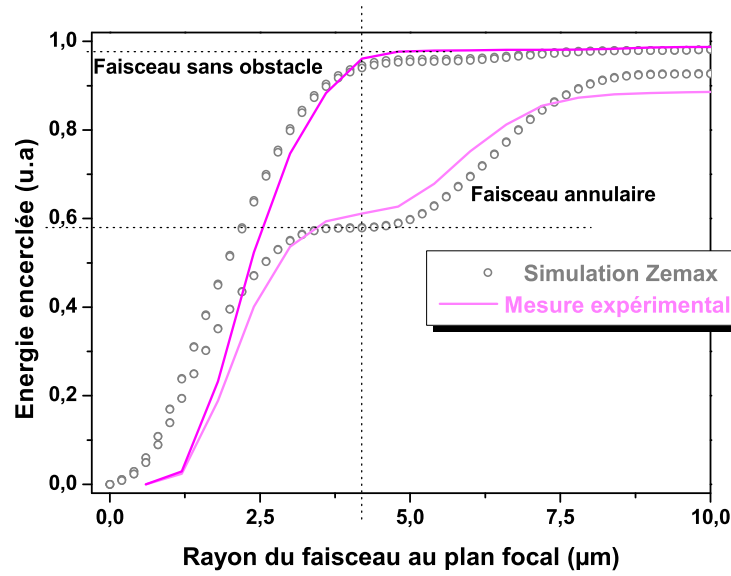


FIGURE 2.20 – Calcul de l'énergie encerclée dans le cas d'un faisceau sans obstacle et d'un faisceau annulaire pour une lentille de focale 18mm

Pour nos expériences, nous nous sommes appuyés sur les simulations Zemax effectuées avec la lentille de focalisation L_2 du cryostat. Nous avons utilisé le facteur de calibration κ' défini précédemment pour évaluer la puissance reçue par l'échantillon. Nous considérons donc que nous perdons 80% de l'énergie par rapport à une géométrie *classique*. Cela n'est pas négligeable, mais les efforts réalisés par ailleurs, en particulier le remplacement des deux lames de verre en excitation ($T_{global}=0.16\%$) par un simple cube ($R_{experimental} = 5\%$), ainsi que l'utilisation de fibres à maintien de polarisation, permettent de compenser cette perte de puissance.

2.2.2 Les outils de façonnage d'impulsions

Parallèlement aux efforts réalisés sur la tête de microscope, nous avons développé des outils de façonnage simples. Ils sont utilisés dans les expériences du chapitre 4.

2.2.2.1 La ligne à dispersion nulle

Nous avons construit une ligne à dispersion nulle ou *Ligne $4f$* . Elle se compose d'un réseau de 2000 traits par millimètre, d'une lentille de focale de 1m, et d'un miroir de repli, le tout dans un arrangement de type $4f$ [74]. Nous nous sommes appuyés sur les travaux de thèse d'Antoine Monmayrant [75] pour choisir les caractéristiques techniques de ces composants optiques. La dispersion spectrale de la ligne $4f$, dont l'expression littérale est donnée par la relation 2.28, est ainsi maximisée.

Les composantes spectrales de l'impulsion d'entrée sont séparées spatialement et imagées dans le plan de Fourier. Dans ce plan, la pulsation et la position transverse sont couplées : toute modification du profil spatial affectera le profil spectral [76]. Un masque, dans notre cas une simple fente, est disposé dans ce plan. Nous pourrions ainsi éliminer certaines composantes spectrales du laser d'excitation, en particulier celles qui n'interviennent pas dans l'interaction. Il s'agit d'un dispositif qui présente une analogie avec un spectromètre à réseaux : le masque prend simplement la place de la caméra CCD. Nous présentons le schéma de principe de la ligne à dispersion nulle sur la Figure 2.21.

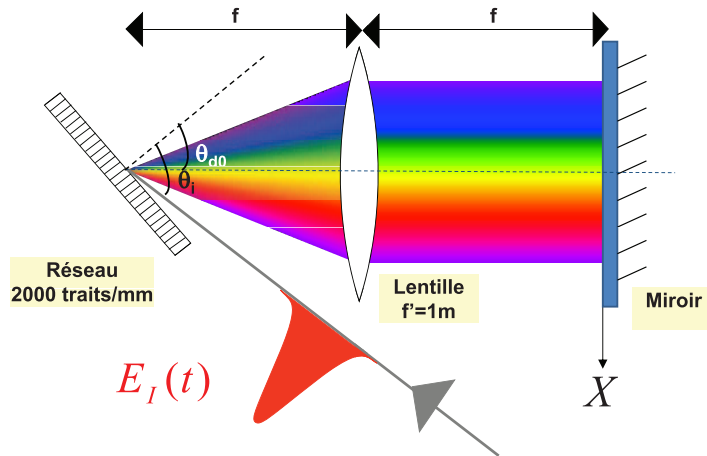


FIGURE 2.21 – Schéma de principe de la ligne $4f$. Les angles θ_i et θ_{d0} désignent respectivement les angles d'incidence et de diffraction pour la longueur d'onde λ_0 sur le réseau. f est la distance focale de la lentille qui vaut 1m.

La ligne à dispersion nulle est placée sur le chemin de la source d'excitation, en amont du microscope.

La relation entre le spectre du laser en entrée $E_{in}(\omega)$ et le spectre en sortie $E_{out}(\omega)$ de la ligne $4f$ est :

$$E_{out}(\omega) = H(\omega).E_{in}(\omega) \quad (2.25)$$

où $H(\omega)$ est la fonction de transfert de la ligne, qui s'écrit :

$$H(\omega) = M_\omega \otimes g(\omega) \quad (2.26)$$

M_ω désigne la fonction de masque, qui, dans notre cas, est une fonction de Heaviside, et $g(\omega)$ correspond à l'extension spatiale au plan de Fourier d'une fréquence donnée.

Calcul du waist dans le plan de Fourier Afin de connaître la résolution de la ligne $4f$, nous devons d'abord évaluer le waist à mi-hauteur dans le plan de Fourier pour un faisceau purement monochromatique. Il s'écrit :

$$w_0 = \frac{\lambda.f}{\pi.w_{in}} \quad (2.27)$$

w_{in} est la largeur à mi-hauteur du faisceau incident, qui vaut 5mm dans notre dispositif expérimental, λ est la longueur d'onde, et w_0 est le waist dans le plan de Fourier.

A 930nm, le waist dans le plan de Fourier vaut $59\mu\text{m}$.

Dispersion spectrale de la ligne $4f$ La dispersion spectrale de la ligne à dispersion nulle s'écrit [76, 77] :

$$\alpha = \frac{dx}{d\omega} = \frac{-f}{d.\cos\theta_d} \quad (2.28)$$

d désigne le pas du réseau et θ_d est l'angle de diffraction du réseau pour la longueur d'onde λ .

Les angles d'incidence θ_i et θ_d sont pris proches de l'angle de Littrow⁶, qui vaut 72° à 950nm. On estime que θ_i vaut environ 80° dans notre géométrie, ce qui

6. L'angle de Littrow correspond à l'angle d'incidence pour lequel le faisceau diffracté revient sur lui-même, c'est-à-dire pour lequel $\theta_i = \theta_d$.

correspond à un angle de diffraction θ_d de 66° à 950nm. La dispersion spectrale théorique à 950nm vaut :

$$\alpha = 4.9\mu\text{m}/\text{pm} \text{ soit } 3.4\mu\text{m}/\mu\text{eV} \quad (2.29)$$

Concrètement, en appliquant le critère de Rayleigh, cela signifie que nous pourrions résoudre deux raies séparées spectralement d'un intervalle de $17.5\mu\text{eV}$. Elles correspondront à deux spots d'une largeur à mi-hauteur de $59\mu\text{m}$, séparés spatialement dans le plan de Fourier d'une distance de $59\mu\text{m}$ à 950nm.

Une mesure expérimentale de la dispersion spectrale a également été réalisée. Nous utilisons pour cela le laser Ti :Sa impulsif centré à 950nm. Son spectre $|E_{in}|^2$ a une largeur à mi-hauteur en intensité de 0.46nm (obtenue par un ajustement gaussien). A la sortie de la ligne à dispersion nulle, le spectre de l'impulsion $|E_{out}|^2$ est mesuré au moyen d'un monochromateur. Pour réaliser notre mesure, nous avons déplacé latéralement la lame située dans le plan de Fourier de la ligne 4f. Nous effectuons ensuite pour chaque position de la lame un ajustement lorentzien du spectre du laser. Sur la Figure 2.22, nous avons tracé l'aire de cette lorentzienne d'ajustement en fonction de la position p de la lame.

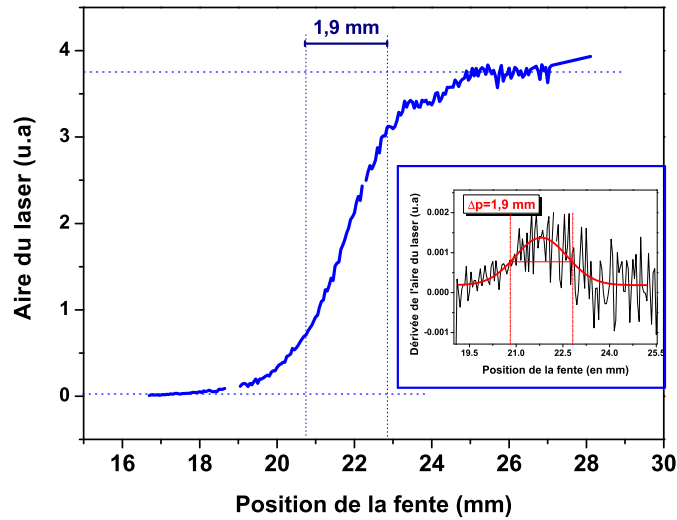


FIGURE 2.22 – Mesure expérimentale de la dispersion spectrale de la ligne 4f. L'aire de la lorentzienne d'ajustement obtenue pour le spectre du laser est tracée en fonction de la position p de la lame dans le plan de Fourier. En encart, nous avons dérivé cette fonction, dont la largeur Δp à mi-hauteur obtenue par un ajustement gaussien vaut 1.9mm.

Nous coupons une bande spectrale de 0.46nm en modifiant la position de la fente au plan de Fourier de 1.9mm. Nous obtenons de cette façon une estimation expérimentale de la dispersion spectrale de la ligne à 950nm :

$$\alpha = 4.2\mu m/pm \text{ à } 950nm \quad (2.30)$$

La valeur expérimentale obtenue est du même ordre de grandeur que l'estimation théorique faite en 2.28. L'erreur expérimentale peut provenir de l'angle d'incidence, dont la valeur n'est connue qu'à quelques degrés près.

2.2.2.2 L'étireur à réseaux

Dans les expériences du chapitre 4, nous avons étiré l'impulsion du laser d'excitation. Pour cela, nous avons construit un étireur à réseaux en double passage [78]. Il est placé sur le chemin du laser Ti :Sa impulsif. Nous en présentons le schéma de principe sur la Figure 2.23 :

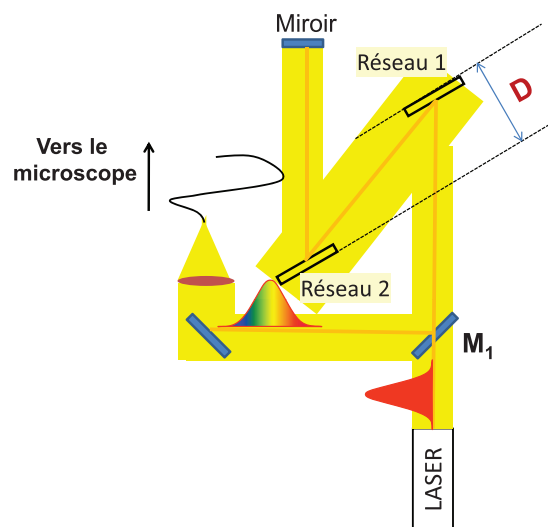


FIGURE 2.23 – L'étireur à réseaux. Il est crucial d'avoir exactement les mêmes angles sur les réseaux d'entrée et de sortie, faute de quoi l'impulsion de sortie présente une forte dérive de fréquence spatiale. Le miroir M_1 est placé à une hauteur plus faible que le faisceau incident : son rôle est de diriger le faisceau en sortie de l'étireur vers le microscope. Les réseaux 1 et 2 ont 2000traits/mm.

Nous faisons quelques rappels succincts concernant la propagation d'une impulsion ultracourte dans un milieu dispersif en Annexe A de ce manuscrit. Nous y détaillons plus particulièrement les notions relatives aux impulsions à dérive de fréquence linéaire (cas de l'*étireur à réseaux*).

L'*étireur à réseaux* en double passage introduit une dispersion quadratique, donnée par [79] :

$$\phi^{(2)} = -\frac{D.\lambda^3}{\pi.c^2.d^2.\cos^3\theta_d} \quad (2.31)$$

θ_d est l'angle de diffraction sur le premier réseau, $\frac{1}{d}$ est le nombre de traits par millimètre de chaque réseau, et D la distance entre les réseaux donnée sur la Figure 2.23.

Dans notre cas, $\frac{1}{d}=2000$ traits/mm, et $\theta_d=61^\circ$ à 930nm (soit un angle d'incidence θ_i de 80°). Nous pouvons grâce à ce dispositif modifier continûment la dérive de fréquence linéaire (*chirp*) introduite sur l'impulsion d'excitation en ajustant simplement la distance D entre les deux réseaux.

Conclusion Nous avons présenté dans ce chapitre les différents outils expérimentaux qui sont utilisés dans les expériences présentées dans les chapitres 3 et 4. Chacun de ces dispositifs est optimisé pour une application particulière :

- Dans le chapitre 3, nous présentons des études en micro-photoluminescence sur boîte quantique unique résolues en polarisation. Nous excitons de façon non résonante à une énergie proche du gap de la couche de mouillage de l'échantillon. Nous utilisons donc la tête de microscope développée par Pierre-François Braun [27]. L'interféromètre de Fabry-Pérot permet de résoudre la structure fine de l'exciton neutre et du trion.
- Dans le chapitre 4, nous excitons de façon quasi-résonante avec le niveau fondamental de la boîte. Nous utilisons la nouvelle tête de microscope, afin d'avoir une bonne réjection du signal de réflexion et de diffusion parasite du laser d'excitation, ainsi que les outils de façonnage d'impulsions présentés (*Ligne 4f* et *étireur à réseaux*).

Chapitre 3

Conversion linéaire-circulaire des états propres de boîte quantique pilotée par la lumière

Sommaire

3.1	L'interaction hyperfine	98
3.1.1	Le système électron-noyau	99
3.1.2	Les spins nucléaires	106
3.2	Description des expériences	110
3.2.1	Présentation des échantillons étudiés	110
3.2.2	Identification des raies	112
3.2.3	Spectroscopie d'excitation de la photoluminescence	118
3.3	Présentation des résultats obtenus sur chaque complexe exci- tonique et interprétation	120
3.3.1	Le trion	121
3.3.2	L'exciton neutre	133
3.3.3	Le bi-exciton	148
3.4	Mise en évidence expérimentale de la structure fine des dif- férents complexes excitoniques	151
3.4.1	Le cas du trion	152
3.4.2	Le cas de l'exciton neutre	153
3.4.3	Le cas du bi-exciton	156

Nous présentons dans ce chapitre les résultats obtenus sur les échantillons de boîtes InAs/GaAs nominale­ment dopées n . L'état de charge fluctuant des boîtes quantiques dans ces échantillons conduit à l'observation de plusieurs transitions excitoniques issues d'une même boîte, ce qui donne lieu à un phénomène original. Lorsque l'échantillon est excité de façon non résonante par une lumière polarisée circulairement, les états propres de l'exciton neutre sont modifiés.

Ce chapitre débute par une brève introduction théorique à l'interaction hyperfine. Elle joue en effet un rôle important dans les effets que nous mettons en évidence par la suite. Dans une seconde partie, nous présentons des mesures réalisées par spectroscopie d'excitation de la luminescence, et des études en fonction de la puissance d'excitation. Nous proposons une interprétation complète de ces résultats expérimentaux. Enfin, la structure fine de chaque complexe excitonique est résolue expérimentalement ; nous verrons que cela confirme les interprétations proposées.

3.1 L'interaction hyperfine

Nous présentons ici les principaux aspects théoriques de l'interaction hyperfine utiles à la compréhension des expériences.

Les règles de sélection optique dans les semiconducteurs ont été introduites dans le chapitre 1 de ce manuscrit. Elles montrent qu'en polarisant la lumière de façon appropriée, une polarisation de spin électronique peut être créée [36].

L'interaction hyperfine est l'interaction entre le spin électronique et les spins nucléaires. Lorsque le matériau semiconducteur est soumis à une excitation polarisée circulairement, le moment angulaire de spin de l'électron photocréé peut être transféré aux noyaux par le biais de l'interaction hyperfine. Il y a alors création d'une *polarisation dynamique nucléaire*.

L'interaction hyperfine est une interaction réciproque. Les noyaux polarisés produisent sur l'électron un champ effectif moyen, appelé *Champ Overhauser* qui peut à son tour modifier la polarisation électronique. Le spin électronique et le spin nucléaire forment donc un système fortement couplé : la polarisation nucléaire n'est pas simplement créée par l'intermédiaire de l'électron, elle exerce également une influence sur ce dernier.

Le pompage optique des spins nucléaires dans les semiconducteurs a fait l'objet d'études poussées dans les années 1970-1980. Les propriétés remarquables mises en évidence à cette époque sont détaillées dans l'ouvrage de référence [37]. Parallèlement, de nouvelles méthodes de caractérisation expérimentales [2] et théoriques [23, 24] des matériaux semiconducteurs se sont développées. La maîtrise des techniques de croissance permet aujourd'hui de concevoir des hétérostructures de basse dimensionnalité, dont les propriétés particulières peuvent renforcer l'interaction hyperfine, en particulier dans les boîtes quantiques.

Expérimentalement, la mesure du taux de polarisation circulaire de la luminescence permet d'accéder au spin électronique moyen [37], et d'en déduire le comportement du système couplé électron-noyau. On peut également accéder à la mesure de la polarisation électronique en utilisant des techniques de type pompe-sonde, comme les mesures de rotation Kerr ou Faraday induite sur une sonde polarisée linéaire-

ment [80, 81]. Actuellement, l'observation de nanocristaux uniques permet d'obtenir une information directe sur la polarisation nucléaire via la mesure du *déplacement Overhauser* par des techniques de microphotoluminescence.

3.1.1 Le système électron-noyau

Nous considérons ici le système électron-noyau dans une boîte quantique semiconductrice auto-organisée de type *InAs/GaAs*, en l'absence de champ magnétique externe. Afin d'avoir une vision complète de l'interaction hyperfine, nous nous intéresserons ensuite au système des spins nucléaires. Deux particules de nature différente sont en jeu : l'électron et le noyau. Elles portent chacune un moment dipolaire associé à leur spin, que nous noterons respectivement $\hat{\mu}_e$ et $\hat{\mu}_I$. Ils sont définis comme suit :

- Le moment dipolaire de l'électron est :

$$\hat{\mu}_e = \hbar\gamma_e\hat{S} = g_e\mu_B\hat{S} \quad (3.1)$$

γ_e est le facteur gyromagnétique de l'électron, $\hat{S}$ son opérateur de spin et μ_B le magnéton de Bohr qui vaut $-9,27 \cdot 10^{-24}$ J/T. Enfin, g_e est le facteur de Landé de l'électron, dont la valeur dépend de la nature et de la composition du matériau semiconducteur considéré.

L'hamiltonien Zeeman d'un spin électronique S plongé dans un champ magnétique $\vec{B}$ s'écrit :

$$\hat{H}_{Ze} = g_e|\mu_B|\vec{B}\vec{S} \quad (3.2)$$

- Le moment dipolaire d'un noyau particulier est :

$$\hat{\mu}_I = \hbar \gamma_I \hat{I} = \mu_N g_n \hat{I} \quad (3.3)$$

γ_I est le facteur gyromagnétique du noyau. Il vaut environ 10 MHz/Tesla. $\hat{I}$ est son opérateur de spin et μ_N est le magnéton nucléaire. Enfin, g_n est le facteur de Landé du noyau considéré.

L'hamiltonien Zeeman pour un système constitué de N^l noyaux s'écrit :

$$\hat{H}_{Zn} = -\mu_N \sum_j^{N^l} g_n \vec{B} \vec{I}_j \quad (3.4)$$

Comme le magnéton de Bohr est environ 2000 fois plus grand que le magnéton nucléaire, il sera beaucoup plus difficile de décaler les niveaux énergétiques des noyaux sous l'action d'un champ magnétique. Afin de donner quelques ordres de grandeur, nous pouvons évaluer la période de précession de Larmor dans un champ magnétique externe de 1 Tesla pour les électrons et les noyaux, en prenant $g_e = g_n = 1$, et le décalage Zeeman correspondant. Nous obtenons :

- Pour les électrons :

$$T_{Le} = \frac{h}{\mu_B g_e B} \approx 0,7 \cdot 10^{-10} \text{ sec} \quad (3.5)$$

Cela correspond à un écart Zeeman en énergie de :

$$\Delta Z_e \approx 60 \mu\text{eV} \quad (3.6)$$

- Pour les noyaux :

$$T_{Ln} = \frac{h}{\mu_N g_n B} \approx 1,3 \cdot 10^{-7} \text{ sec} \quad (3.7)$$

Cela correspond à un écart Zeeman en énergie de :

$$\Delta Z_n \approx 27 \text{ neV} \quad (3.8)$$

Les noyaux ont donc un mouvement de précession beaucoup plus lent que les électrons sous champ magnétique. De plus, comme $\Delta Z_n \ll k_B T$, il n'est pas possible

d'orienter directement les spins nucléaires aux températures cryogéniques habituelles ($T=2-5K$) et aux champs magnétiques usuels ($B < 10$ Teslas). Pour qu'une polarisation nucléaire se construise, il est nécessaire de photogénérer des électrons polarisés en spin, afin qu'ils polarisent les noyaux par le biais de l'interaction hyperfine.

L'hamiltonien du système constitué d'un électron confiné dans une boîte quantique et des N^l noyaux de spin I^j qui la composent peut s'écrire sous la forme :

$$\hat{H} = \hat{H}_{dip} + \hat{H}_{contact} \quad (3.9)$$

Le premier terme $\hat{H}_{dip}$ correspond au terme d'interaction dipôle-dipôle entre moments magnétiques électroniques et nucléaires. Le second $\hat{H}_{contact}$ est le terme de contact de Fermi : c'est le terme dominant de l'hamiltonien hyperfin pour les électrons de conduction. Nous détaillons chacun de ces termes dans les paragraphes suivants.

3.1.1.1 Le terme dipolaire de l'hamiltonien hyperfin

Le terme dipolaire de l'hamiltonien hyperfin est un terme d'interaction à "longue portée". Il couple le spin nucléaire et le spin de l'électron lorsque ce dernier n'est pas localisé sur le même site atomique que le noyau considéré. Il représente l'interaction dipôle-dipôle entre les moments magnétiques électronique et nucléaire.

L'hamiltonien qui décrit cette interaction s'écrit¹ [42] :

$$\hat{H}_{dip} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left(\frac{\hat{\mu}_e \hat{\mu}_I r_{ij}^2 - 3(\hat{\mu}_e \cdot r_{ij})(\hat{\mu}_I \cdot r_{ij})}{r_{ij}^5} \right) \quad (3.10)$$

Ce terme est en général négligeable pour les électrons de conduction en comparaison du terme de contact. En revanche, pour les trous de la bande de valence, le terme de contact est négligeable : on peut donc envisager de coupler les spins nucléaires et le spin du trou de la bande de valence [52] via l'interaction dipole-dipole.

1. en convention SI

3.1.1.2 Le terme de contact de Fermi

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, dans l'approximation de la fonction enveloppe, la fonction d'onde $\Psi_{n,\vec{k}}$ de l'électron dans une hétérostructure semiconductrice s'écrit :

$$\Psi_{n,k}(\vec{r}) = F_n(\vec{r})u_{n,0}(\vec{r}) \quad (3.11)$$

Elle fait intervenir une fonction lentement variable à l'échelle de la maille élémentaire, appelée fonction enveloppe, notée $F_n(\vec{r})$, où n désigne l'indice de bande. Les fonctions $u_{n,0}$ sont les fonctions de Bloch en $\vec{k}=\vec{0}$, moyennées sur l'ensemble de l'hétérostructure. Ce sont des fonctions périodiques du réseau dans l'espace réel qui contiennent l'information sur la nature et l'arrangement des éléments chimiques du cristal. Elles se transforment comme les orbitales atomiques pour les opérations de symétrie du groupe T_d .

Nous pouvons à présent introduire le terme de contact de Fermi de l'hamiltonien hyperfin. Il peut s'écrire pour un noyau j donné sous la forme d'un hamiltonien d'Heisenberg, en remplaçant les opérateurs "moments magnétiques" par les opérateurs de spin [42] :

$$\hat{H}_{h.f}^j = \nu_0 A^j |F_n(\vec{r}_j)|^2 \hat{S} \cdot \hat{I}^j \quad (3.12)$$

$F_n(\vec{r}_j)$ est la fonction enveloppe de l'électron sur le $j^{\text{ième}}$ noyau. $\hat{S}$ et $\hat{I}^j$ sont les opérateurs de spin pour l'électron et le noyau j , et ν_0 est le volume de la cellule élémentaire².

Enfin, A^j est la constante hyperfine normalisée sur la cellule élémentaire, définie de la façon suivante :

$$A^j = \frac{16\pi}{3I} \frac{\mu_B \mu_N}{\nu_0} \eta^j \quad (3.13)$$

$\eta^j = |u(r_j)|^2$ est l'amplitude de la fonction de Bloch sur le site atomique, μ_N est le magnéton nucléaire, et μ_B le magnéton de Bohr. La valeur de A^j dépend donc du choix de la cellule élémentaire. A^j vaut $\sim 50\mu\text{eV}$ pour les boîtes quantiques *InAs/GaAs*.

². Dans la structure Zinc-blende, elle contient conventionnellement deux atomes, comme la maille primitive.

La présence du terme η^j dans l'équation 3.13 exprime bien le fait que le terme de contact n'existe que lorsque les fonctions d'onde de l'électron et du noyau se recouvrent. Ainsi, en raison de la symétrie p de la partie de Bloch décrivant les états de valence, l'interaction hyperfine de contact est en principe négligeable pour ces états. En revanche, la symétrie s des états de conduction favorise le recouvrement de la fonction d'onde sur le site atomique. Nous considérerons donc que seuls les électrons de conduction interagissent notablement avec les noyaux via l'interaction de contact.

L'hamiltonien hyperfin pour l'électron en interaction avec les N^l noyaux est un hamiltonien instantané, que nous pouvons écrire (lorsque l'électron est présent dans la boîte) :

$$\hat{H}_{h.f} = \nu_0 \sum_j^{N^l} A^j |F_n(\vec{r}_j)|^2 \left(\hat{I}_z^j \hat{S}_z + \left(\frac{\hat{I}_-^j \cdot \hat{S}_+ + \hat{I}_+^j \cdot \hat{S}_-}{2} \right) \right) \quad (3.14)$$

Nous pouvons remplacer cet hamiltonien instantané par un hamiltonien effectif permettant de rendre compte de la dynamique de la polarisation nucléaire [82]. Pour cela, nous l'écrivons sous la forme d'un terme statique $\mathcal{H}_0$, qui traduit la polarisation nucléaire atteinte en régime stationnaire, et d'un terme fluctuant dépendant du temps $\mathcal{H}(t)$:

$$\hat{\mathcal{H}} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}(t) \quad (3.15)$$

Ce qui donne :

$$\hat{H}_{h.f} = \nu_0 \sum_j^{N^l} A^j |F_n(\vec{r}_j)|^2 \left(\frac{\hat{I}_-^j \cdot \hat{S}_+ + \hat{I}_+^j \cdot \hat{S}_-}{2} \right) h_1(t) + g_e \mu_B \vec{B}_N \cdot \hat{\vec{S}} + \sum_j^{N^l} \hbar \gamma_I \vec{B}_e^j \cdot \hat{\vec{I}}^j \quad (3.16)$$

$h_1(t)$ est une fonction aléatoire *classique*, qui traduit la présence ou l'absence de l'électron dans la boîte ($h_1(t) \in [0,1]$), et n'apporte aucune information sur son spin. Elle vaut 1 lorsque l'électron est présent, 0 sinon. Sa moyenne $\overline{h_1(t)}$ vaut f_e , qui désigne la fraction du temps pendant lequel l'électron est présent dans la boîte.

Sa fonction d'auto-corrélation $g(\tau)$ est :

$$g(\tau) = \overline{h_1(t) h_1(t + \tau)} = f_e \exp -\frac{|\tau|}{\tau_c} \quad (3.17)$$

τ_c est le temps de corrélation de la fonction $h_1(t)$. Il est lié au temps de capture de

l'électron dans la boîte et à son temps de vie radiatif. Ce temps est très court dans la pratique (quelques dizaines de ps [83]).

L'hamiltonien écrit en 3.16 se compose de deux parties distinctes :

- Le premier terme est un terme *fluctuant* dépendant du temps. Il couple les opérateurs création et annihilation des deux spins. Il est le "moteur" de l'interaction hyperfine : il est à l'origine du transfert de moment angulaire qui s'opère entre l'électron et le noyau (*flips-flops*).
- Les deux derniers termes sont des termes *moyens* que nous détaillons dans le paragraphe suivant. Il sont respectivement proportionnels au *champ Overhauser* $\vec{B}_N$ ressenti par l'électron et créé par les noyaux et au *champ Knight* $\vec{B}_e^j$ ressenti par les noyaux et créé par l'électron.

Le champ Overhauser et le champ Knight

Nous présentons dans cette partie le champ *Overhauser* et du champ *Knight*, qui sont liés aux deux derniers termes de l'équation 3.16. Ce sont des champs magnétiques *effectifs* caractéristiques de l'interaction hyperfine.

- Le champ nucléaire ou champ *Overhauser* traduit l'interaction entre les spins des N^l noyaux de la boîte et le spin de l'électron. C'est le champ effectif *moyen* ressenti par l'électron du fait de la polarisation nucléaire. A partir de l'expression du terme de contact de l'hamiltonien hyperfin 3.16 et de l'hamiltonien Zeeman de l'électron 3.2, il s'écrit [42] :

$$\vec{B}_N = \frac{\nu_0 \sum_j^{N^l} A^j |F_n(\vec{r}_j)|^2 \langle \hat{\vec{I}}^j \rangle}{g_e \mu_B} \quad (3.18)$$

La somme se fait sur les N^l noyaux présents dans la boîte. Dans le cas d'une boîte quantique $In_{0.5}Ga_{0.5}As$, il faudra donc considérer les noyaux de gallium Ga, d'arsenic As et d'indium In, ainsi que leur fraction respective. $\langle \hat{\vec{I}}^j \rangle$ désigne le spin nucléaire moyen, la moyenne étant prise sur l'état quantique du noyau considéré.

Le champ Overhauser maximal dans une boîte quantique, qui correspond à une polarisation nucléaire de 100%, peut atteindre quelques Teslas. Il vaut par exemple 5.1 Teslas dans *GaAs* [84]. Expérimentalement, D. Gammon et collaborateurs ont obtenu une polarisation nucléaire de 68% sous excitation quasi-résonante dans des boîtes quantiques à fluctuations d'interface de type *GaAs/AlGaAs* [85]. Cela correspond à un champ Overhauser de 1.2 Teslas. Par ailleurs, une polarisation nucléaire de 38% a été atteinte dans des boîtes quantiques auto-organisées de type *InAs/GaAs* [86] sous excitation non-résonante.

- Le champ Knight est le champ magnétique effectif *moyen* que produit l'électron polarisé sur le $j^{\text{ième}}$ noyau. Il s'écrit [42] :

$$\vec{B}_e^j = -f_e \frac{\nu_0 A^j |F_n(\vec{r}_j)|^2 \langle \hat{\vec{S}}^j \rangle}{\mu_N g_n} \quad (3.19)$$

Ce champ est inhomogène spatialement : il prendra une valeur différente d'un noyau à l'autre. Par exemple, dans le cas d'une boîte quantique, il sera plus fort au centre de la boîte qu'à sa périphérie.

En prenant une fonction enveloppe approchée carrée uniforme, normalisée sur le volume $V = \frac{N^l \nu_0}{2}$ contenant l'ensemble des N^l noyaux, on peut réécrire le champ Knight de la façon suivante :

$$|\vec{B}_e^j| = -f_e \frac{2A^j \langle S \rangle}{\hbar \gamma_I N^l} \quad (3.20)$$

Nous pouvons introduire quelques ordres de grandeur à partir de cette expression. Pour une boîte quantique constituée de 10^5 atomes, de constante hyperfine $A^j \sim 50 \mu\text{eV}$ et de spin moyen $\langle S \rangle \sim 0,1$, le champ Knight vaut $|\vec{B}_e^j| \sim 20 \text{ G}$ [87].

Il y a une différence d'ordre de grandeur entre le champ Overhauser et le champ Knight. En effet, l'électron interagit avec un grand nombre de noyaux tandis qu'un noyau voit un unique électron. En particulier, dans une boîte quantique contenant N^l noyaux, l'écart entre les niveaux énergétiques du noyau dû au champ Knight sera $N^l \frac{\gamma_e}{f_e \gamma_I}$ fois plus petit que l'écart entre les niveaux énergétiques d'un électron dans le champ Overhauser.

3.1.2 Les spins nucléaires

Nous nous intéressons ici au système formé par les spins nucléaires seuls. Il faut en effet tenir compte de la dynamique intrinsèque de ce système afin de comprendre les mécanismes fins qui gouvernent la construction de la polarisation nucléaire. L'évolution de ce système est contrôlée par deux types d'interaction : l'*interaction dipole-dipole* et l'*interaction quadrupolaire*.

3.1.2.1 Couplage dipolaire entre noyaux

Les spins nucléaires interagissent entre eux via l'interaction dipole-dipole. Le rôle de cette interaction est de redistribuer l'énergie au sein du système. Son hamiltonien s'écrit [42] :

$$\hat{H}_{d,d} = \frac{\mu_N^2 \mu_0}{8\pi} \sum_{j \neq j'} \frac{g_n g_{n'}}{r_{jj'}^3} \left((\hat{I}_j \hat{I}_{j'}) - 3 \frac{(\hat{I}_j r_{jj'}) (\hat{I}_{j'} r_{jj'})}{r_{jj'}^2} \right) \quad (3.21)$$

$r_{jj'}$ correspond à la distance entre les deux noyaux j et j' .

Cette interaction est à longue portée. Elle permet au spin nucléaire de diffuser hors de la boîte quantique, de sorte qu'il n'y a pas conservation du moment angulaire total dans le système constitué des N^l noyaux et de l'électron de la boîte.

L'interaction dipolaire déphase les spins nucléaires en un temps typique de $100\mu s$. Ce temps correspond au temps de précession de Larmor des spins nucléaires dans le champ local, qui est le champ effectif ressenti par un noyau particulier dans la boîte dû à tous les autres noyaux. Il vaut quelques Gauss dans GaAs. Ce temps correspond aussi à l'ordre de grandeur du temps de corrélation d'une configuration de spin nucléaire donnée.

Dans une boîte quantique dans laquelle on serait capable de maintenir une polarisation de spin importante, l'interaction dipole-dipole entre noyaux pourrait être écrantée par le champ Knight que nous avons introduit plus haut.

3.1.2.2 Les effets quadrupolaires

Les effets quadrupolaires sont d'origine électrostatique. Ils sont proportionnels au gradient de champ électrique présent dans la structure. On peut mentionner deux contributions importantes à ces effets :

- Il peuvent être créés par des désordres d'alliage au sein de la structure. Par exemple, dans les boîtes quantiques *InAs/GaAs*, la substitution d'atomes d'Indium par des atomes de Gallium brise la symétrie des sites As voisins et induit une distorsion locale du cristal. Ceci a pour conséquence une redistribution de la charge dans les liaisons chimiques As–Ga et As–In, générant un gradient local de champ électrique sur le site de As, dirigé le long des liaisons chimiques.
- La contrainte bi-axiale inhérente à la méthode de croissance Stransky-Krastanov produit également un effet quadrupolaire important. Dans les boîtes *InAs/GaAs*, c'est cette contribution qui domine³. Le tenseur gradient de champ électrique a pour axe principal (Oz) [88, 89].

L'interaction quadrupolaire d'un spin nucléaire avec le gradient du champ électrique présent dans la boîte quantique est décrite par l'hamiltonien suivant :

$$\hat{H}_Q = \sum_{\alpha, \beta} V_{\alpha\beta} \hat{I}_\alpha \hat{I}_\beta \quad \text{avec } (\alpha, \beta) \in [x, y, z] \quad (3.22)$$

Les coefficients $V_{\alpha\beta}$ sont proportionnels au gradient du champ électrique au niveau du noyau, ainsi qu'au moment quadrupolaire du noyau qui est non nul dès lors que le noyau considéré porte un spin supérieur à 1.

Dans l'hypothèse où le tenseur gradient champ électrique possède la symétrie axiale⁴, cet hamiltonien s'écrit : [89, 82] :

$$\hat{H}_Q = \frac{h\nu_Q}{2} \left((I_Z^j)^2 - \frac{I^j(I^j + 1)}{3} \right) \quad (3.23)$$

ν_Q est le moment quadrupolaire du noyau.

3. Le désaccord de maille entre *InAs* et *GaAs* est en effet très important (~7%).

4. qui n'est pas nécessairement l'axe (Oz).

Ces effets n'induisent pas directement de relaxation de spin, mais aboutissent au mélange de différents états de spin nucléaire. Ils lèvent en effet la dégénérescence des niveaux énergétiques des noyaux, qui se regroupent sous forme de doublets de même m , m étant le module de la projection du moment angulaire de spin. Il est encore très difficile à l'heure actuelle de quantifier ces effets [90]. Ils jouent un rôle essentiel dès lors que le décalage Zeeman des noyaux ΔZ_n est inférieur à $h\nu_Q$. Cela correspond à des champs de l'ordre de 100 mT dans des boîtes d'InP [89] et de 400mT dans le cas des boîtes *InAs/GaAs* [91].

Conclusion

L'intérêt pour les structures de basse dimensionnalité (en particulier les boîtes quantiques) est aujourd'hui très marqué. Elles ont en effet une fonction d'onde électronique très localisée et une grande aptitude à capturer des excitons et donc à maintenir un taux d'occupation électronique élevé sur un même ensemble de noyaux en nombre limité. Ces propriétés renforcent le rôle de l'interaction hyperfine.

L'étude des effets nucléaires a pris une place très importante dans la communauté des boîtes quantiques semiconductrices. L'interaction hyperfine est en effet le phénomène prépondérant pour la relaxation du spin de l'électron dans les boîtes quantiques à basse température [92, 48]. Le champ nucléaire fluctuant agit sur le spin de l'électron comme un champ magnétique externe aléatoire qui le déphase.

Il est possible de s'affranchir de ces fluctuations en appliquant un champ magnétique externe supérieur à 45mT (qui est l'ordre de grandeur des *fluctuations* du champ nucléaire dans nos structures). Dans ces conditions expérimentales, l'interaction hyperfine n'est plus une limite pour la relaxation du spin de l'électron ; elle peut au contraire être utilisée pour polariser les noyaux dans la boîte quantique. En particulier, il a été démontré que la polarisation dynamique des noyaux était à l'origine d'un champ nucléaire effectif pouvant atteindre quelques Teslas [86, 93, 83, 85, 94, 95]. Dans ce contexte, il est aujourd'hui envisagé de coder l'information quantique, non plus sur le spin de l'électron mais sur les spins nucléaires, dont les temps de vie peuvent atteindre la seconde [96, 97].

Parallèlement, les travaux de C. W.Lai e P.Maletinsky à l'ETH Zurich ont montré qu'il était possible de polariser les noyaux même en l'absence de champ magnétique externe dans des boîtes quantiques de type InAs/GaAs [87] : le champ Knight de l'électron (mesuré à des valeurs de quelques dizaines de Gauss [91, 87]) permet en effet d'écranter le champ local fluctuant qui dépolarise les noyaux et inhibe la construction de la polarisation nucléaire. Ceci ouvre de nouvelles perspectives.

C'est dans ce contexte particulier que se situe ce travail : nous allons chercher à utiliser le champ nucléaire *effectif* pour orienter optiquement les états propres de l'exciton neutre, comme le ferait un champ magnétique externe [10]. On disposerait alors d'une source dont l'état de polarisation serait ajustable simplement par la lumière. Dans ce dispositif, il ne serait plus nécessaire d'appliquer un champ magnétique externe. Ce dernier serait simplement remplacé, évitant l'utilisation d'une infrastructure lourde.

3.2 Description des expériences

Nous présentons dans cette partie les échantillons étudiés, puis le principe des expériences de caractérisation : la *spectroscopie de photoluminescence stationnaire*, utilisée pour l'identification des raies excitoniques et la *spectroscopie d'excitation de la photoluminescence*.

3.2.1 Présentation des échantillons étudiés

L'échantillon étudié se compose de boîtes quantiques auto-organisées de type *InAs/GaAs* nominalement dopées *n*. Une forte densité d'atomes avec un excès de charge(s) électronique(s), des dopants, est placée quelques nanomètres sous le plan de boîte (2nm dans notre échantillon). Cette couche de dopants (il s'agit dans notre cas du silicium donneur en site Ga) permet aux électrons en excès de peupler les boîtes par effet tunnel.

L'échantillon, réalisé au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures de Marcoussis par A.Lemaître par épitaxie à jets moléculaires, est formé de l'empilement de couches présenté sur la Figure 3.1 :

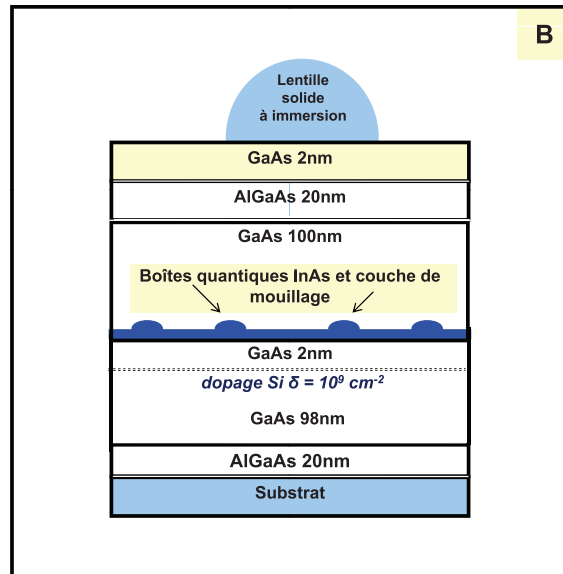


FIGURE 3.1 – Schéma de la structure des échantillons dopés chimiquement

La lentille solide à immersion Nous avons placé sur ces échantillons une lentille solide à immersion de forme hémisphérique. Elle est schématisée sur la Figure 3.2. Cette lentille, d'un rayon de 1mm, est en oxyde de zirconium ZrO_2 . Accolée à l'échantillon à l'aide d'une fine couche de graisse à vide, elle réalise une adaptation d'indice : l'angle solide de collection augmente ainsi sensiblement. Cela se traduit expérimentalement par une augmentation du signal de luminescence d'un facteur 5.

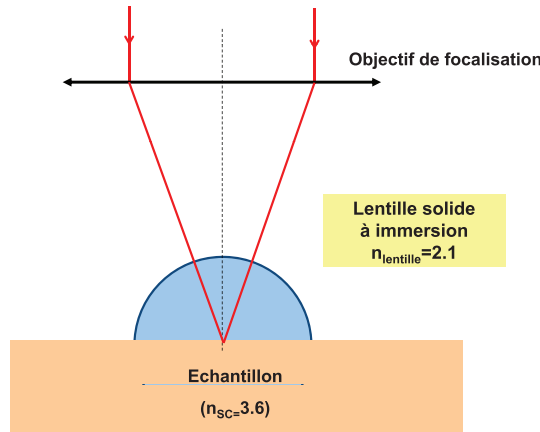


FIGURE 3.2 – *Chemin des rayons lumineux à travers la lentille solide à immersion*

L'angle de collection maximal peut être évalué à partir des lois de Snell-Descartes, en utilisant les notations de la Figure 3.2 :

$$\theta_{max} = \arcsin \left(\frac{n_{lentille}}{n_{SC}} \right) \quad (3.24)$$

L'épaisseur de la couche de graisse à vide traversée est ici négligée : nous la supposons d'épaisseur sub-micronique. Avec $n_{ZrO_2}=2.1$ et $n_{GaAs}=3.6$, nous obtenons : $\theta_{max}=35^\circ$.

L'angle solide de collection correspondant est :

$$\Omega = 2.\pi.(1 - \cos(\theta)) \quad (3.25)$$

Il vaut 1,2 sr, à comparer au 0,25 sr obtenu en l'absence de micro-lentille. Cette augmentation de l'angle de collection d'un facteur 5 est en accord avec nos observations expérimentales.

3.2.2 Identification des raies

Nous avons réalisé des mesures de spectroscopie de photoluminescence stationnaire afin de connaître la position de la transition excitonique fondamentale de chaque boîte quantique analysée. Ce type d'expérience consiste à exciter l'échantillon avec une source lumineuse qui génère des photons d'énergie *fixée*. Le laser utilisé dans nos expériences est un Ti :Sa continu, dont l'énergie est fixée à 1.44 eV. Cela correspond à l'énergie de transition proche du gap de la couche de mouillage de nos échantillons.

Nous mesurons alors la variation de l'intensité de luminescence émise par l'échantillon lors de sa désexcitation *en fonction de l'énergie de détection*. Les photons absorbés génèrent des paires électrons-trous qui relaxent rapidement vers les états d'énergie les plus bas (états excitoniques de boîte quantique) avant de se recombiner radiativement. A basse température, la photoluminescence permet donc de déterminer la transition optique de plus basse énergie.

Comme l'indique la Figure 3.3, dans notre échantillon, nous observons plusieurs transitions émises par une même boîte.

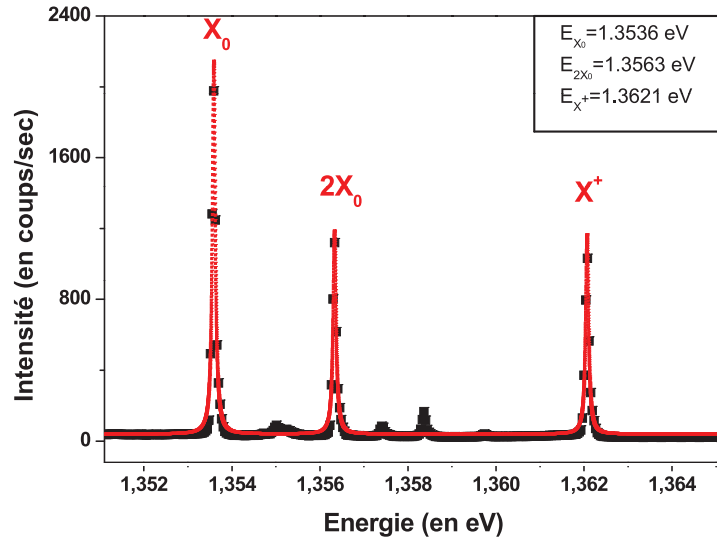


FIGURE 3.3 – Spectres de photoluminescence stationnaire en excitant de façon non résonante dans la couche de mouillage ($E_{Laser} = 1.44\text{eV}$). On observe la présence de trois transitions excitoniques issues d'une même boîte quantique : l'exciton neutre X_0 à $E_{X_0}=1.3536\text{ eV}$, le bi-exciton $2X_0$ à $E_{2X_0}=1.3563\text{ eV}$ et le trion X^+ à $E_{X^+}=1.3621\text{ eV}$

Chacune des transitions observées correspond à un complexe excitonique particulier qui se forme lors de l'excitation :

- La première transition correspond à l'*exciton neutre*, noté X_0 . Il est constitué d'une paire électron-trou en interaction coulombienne.
- La seconde transition correspond à la désexcitation radiative de l'état de bi-exciton $2X_0$ vers l'état X_0 . L'état $2X_0$ se compose de deux paires électron-trou en interaction coulombienne.
- Enfin, la dernière transition correspond à l'*exciton chargé* ou trion, noté X^+ . Dans son état fondamental, il se compose de deux trous appariés de spins anti-parallèles (dans l'état de valence le plus haut) et d'un seul électron (dans l'état de conduction le plus bas). Il est identifié par sa forte polarisation circulaire de luminescence sous excitation non résonante. D'autre part, la transition associée à l'exciton chargé X^+ se trouve décalée spectralement vers le bleu par rapport à l'exciton neutre [98].

L'apparition de plusieurs transitions excitoniques montre que l'état de charge de la boîte fluctue dans le temps : elles résultent de l'intégration des spectres de photoluminescence sur un temps long devant le temps de corrélation des fluctuations de charge. Ce phénomène de *charges fluctuantes* n'est pas nouveau : il a déjà été observé dans des échantillons dopés chimiquement contenant des boîtes quantiques de type *InAs/GaAs* [99, 100, 101], et également dans des structures à base de CdTe [102], CdSe [103], ou encore d'InP [104].

Pour s'affranchir de ces fluctuations, des échantillons à *charge ajustable* peuvent être utilisés : on peut alors sélectionner de manière fiable la transition que l'on désire étudier en modifiant simplement une tension de grille. Le principe de fonctionnement de ce type d'échantillon est expliqué de façon détaillée dans le chapitre 4.

D'autre part, notre échantillon est à modulation de dopage (*δ -dopage*) : au cours de la croissance, une monocouche de dopant de type silicium donneur (en site gallium) a été introduite de façon à obtenir une structure de type *n* (avec un excès d'électrons). Cette monocouche est très localisée, et se situe à 2nm du plan de boîtes, comme le montre la Figure 3.1. Les expériences de photoluminescence stationnaire

donnent donc un résultat surprenant. En effet, notre échantillon étant nominale-ment dopé n , on devrait observer la raie d'émission du trion X^- , et non celle du trion X^+ , comme l'indique la Figure 3.3.

Pour plus de clarté, nous présentons sur la Figure 3.4 la structure de bande de notre échantillon, où nous avons placé le niveau du silicium donneur et du silicium accepteur (d'après [105]).

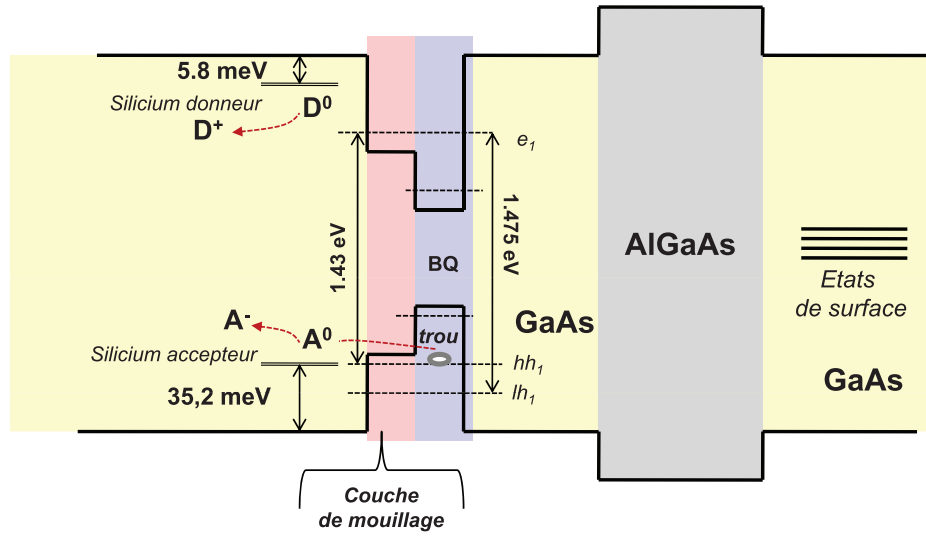


FIGURE 3.4 – Structure de bande de l'échantillon. Le silicium donneur (en site Ga) est à 5.85 meV de la bande de conduction de GaAs et le silicium accepteur (en site As) est à 35.4 meV de la bande de valence de GaAs(d'après [105]). lh_1 et hh_1 désignent respectivement la bande de trous légers et la bande de trous lourds et e_1 l'état fondamental de conduction de la couche de mouillage de l'échantillon.

Les écarts en énergie entre les bandes de trous lourds et de trous légers et la bande de conduction (de 1.43eV et 1.475eV respectivement) de la couche de mouillage de notre échantillon sont estimés grâce aux mesures réalisées par excitation de la photoluminescence présentées dans le paragraphe 3.3.1.

Le trion X^+ peut provenir de la capture d'un exciton X_0 par une boîte chargée d'un trou. Il y a donc *a priori* un excès de trous anormal dans notre structure. Deux hypothèses peuvent être avancées pour l'expliquer :

- Le silicium introduit au cours de la croissance est amphotère : il peut donc se comporter comme un donneur ou comme un accepteur selon qu'il est placé sur un site gallium ou arsenic⁵. Au cours de la croissance, des atomes de silicium peuvent se placer sur un site accepteur (en quantité minoritaire par rapport au silicium donneur). Il y aurait de cette façon des centres accepteurs peu profonds dans notre structure (au voisinage du plan de dopage).
- Parallèlement, il est possible que les états de surface piègent les électrons libérés par le silicium donneur [106]. Il peut également y avoir une compensation partielle de la charge entre silicium donneur et accepteur ($D^0 + A^0 \rightarrow D^+ + A^-$). De cette façon, l'électron du silicium donneur ne peuplerait pas les états de conduction de la boîte, expliquant l'absence du trion X^- dans les raies obtenues en photoluminescence stationnaire.

5. Les niveaux du silicium donneur et accepteur sont indiqués sur la Figure 3.4.

Identification des raies Pour identifier chacune des transitions observées par photoluminescence stationnaire, nous analysons leur comportement après excitation par une lumière polarisée :

- La structure fine de l'exciton neutre se compose de deux transitions polarisées linéairement le long des axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. Ces deux transitions sont séparées par l'énergie d'échange anisotrope δ_1 , dont la valeur fluctue d'une boîte à l'autre. Le bi-exciton possède la même structure fine, mais chaque composante polarisée linéairement est renversée par rapport à l'exciton (*structure miroir*). La Figure 3.5 ci-dessous présente un couple exciton-bi-exciton classique identifié dans notre échantillon, avec δ_1 valant $34 \mu\text{eV}$:

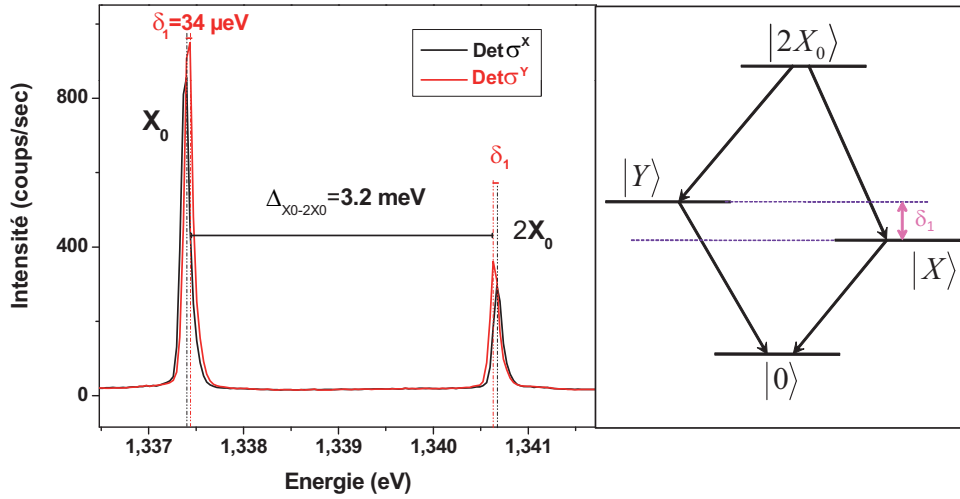


FIGURE 3.5 – Couple exciton-bi-exciton : on observe la structure "miroir" des raies linéairement polarisées pour l'exciton et le bi-exciton. Pour les raies présentées ici, l'écart exciton-bi-exciton Δ_{X0-2X0} vaut 3.2 meV , et l'énergie d'échange anisotrope δ_1 vaut $34 \mu\text{eV}$.

Cette première caractéristique est une aide précieuse pour l'identification des raies de luminescence. On mesure ensuite l'évolution de l'intensité de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation. Elle est représentée sur la Figure 3.6.

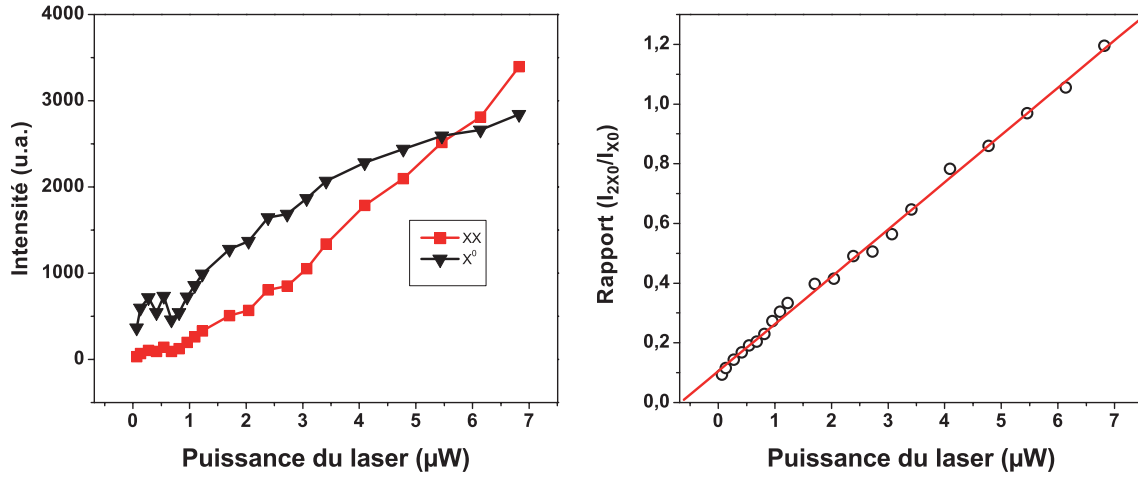


FIGURE 3.6 – Méthode d'identification de l'exciton X_0 et bi-exciton $2X_0$. A gauche : intensité de photoluminescence de l'exciton neutre et du bi-exciton en fonction de la puissance d'excitation ; A droite : rapport des intensités du bi-exciton et de l'exciton $\frac{I_{2X_0}}{I_{X_0}}$.

L'intensité de l'exciton augmente quasi-linéairement jusqu'à saturation en fonction de la puissance d'excitation. Le bi-exciton présente en revanche un comportement super-linéaire en puissance. De façon à s'affranchir des phénomènes de saturation, nous avons également tracé sur la Figure 3.6 le rapport des intensités du bi-exciton I_{2X_0} et de l'exciton I_{X_0} en fonction de la puissance. Comme attendu, il présente un comportement linéaire.

- Le trion chargé X^+ ne présente pas une telle structure, comme attendu (cf chapitre 1). Sa configuration de spin annule en effet les termes d'échange e-/trou deux à deux. Il y a deux conséquences à cela :
 1. On mesure une forte polarisation circulaire de la luminescence sous une excitation polarisée circulairement, témoin de l'orientation optique de l'électron de conduction.
 2. La transition correspondant à l'exciton chargé est décalée spectralement vers le bleu par rapport à celle de l'exciton neutre [98].

Nous suivons cette procédure pour l'identification de chaque transition de boîte.

3.2.3 Spectroscopie d'excitation de la photoluminescence

Pour mettre en évidence le rôle de l'énergie d'excitation, nous avons réalisé des expériences de spectroscopie d'excitation de la photoluminescence (PLE).

Cette technique consiste à mesurer la variation de l'intensité de la luminescence émise à une énergie donnée (en général celle du pic de la transition X_0 ou X^+ observée en spectroscopie de photoluminescence stationnaire) en fonction de l'énergie d'excitation. Lorsque l'énergie d'excitation est résonante avec une transition optique du matériau, des paires électrons-trous sont photogénérées très efficacement. Les porteurs relaxent vers le niveau fondamental où ils se recombinent radiativement, provoquant une augmentation du signal de luminescence détecté. L'information que l'on peut tirer d'un spectre de PLE est donc qualitativement proche de celle fournie par des spectres d'absorption.

Les spectres de PLE donnent une information complémentaire par rapport aux expériences de spectroscopie de photoluminescence stationnaire. Ils révèlent en effet la position énergétique des transitions optiques intrinsèques du semiconducteur, en particulier celle des transitions de plus haute énergie.

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre 2, notre montage expérimental permet l'analyse sélective des composantes polarisées du signal de luminescence au moyen de lames à retard de phase variable sur les voies d'excitation et de détection du microscope confocal.

Grâce à cela, nos études en PLE sont *résolues en polarisation*. En particulier, nous avons analysé l'influence de l'énergie du laser d'excitation sur les taux de polarisation circulaire et linéaire de la luminescence.

Les taux de polarisation circulaire et linéaire de la luminescence sont respectivement définis par :

$$P_{circ} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \quad et \quad P_{lin} = \frac{I^X - I^Y}{I^X + I^Y},$$

où I^+ , I^- sont les intensités de luminescence détectées avec une polarisation circulaire σ^+ ou σ^- , et I^X , I^Y sont les intensités de luminescence détectées avec une polarisation linéaire π^X ou π^Y , le long des axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$.

Mesure du déplacement Overhauser

Pour chaque énergie du laser d'excitation, nous avons également mesuré le déplacement Overhauser, qui correspond à la différence d'énergie entre les deux composantes spectrales détectées avec une polarisation σ^+ et σ^- . Il est proportionnel au champ nucléaire effectif présent au sein de la boîte, et s'écrit :

$$\delta_n = g_e \mu_B \cdot B_N \quad (3.26)$$

L'écart énergétique entre deux transitions est mesuré précisément en utilisant une déconvolution par une fonction lorentzienne des raies de luminescence. Avec cette technique, l'erreur sur la position du maximum est de l'ordre de $1\mu\text{eV}$. Nous accédons ainsi au déplacement Overhauser δ_n du trion X^+ et de l'exciton neutre.

Dans le cas particulier de l'exciton neutre, les excitons brillants sont séparés par l'énergie d'échange anisotrope δ_1 . De ce fait, lorsque l'on détecte la luminescence avec une polarisation circulaire σ^+ ou σ^- , en l'absence de champ nucléaire effectif dans la boîte, le spectre détecté se compose de deux lorentziennes de force d'oscillateur identique. En revanche, lorsqu'un champ nucléaire effectif est présent au sein de la boîte, on obtient deux lorentziennes dont la force d'oscillateur relative dépend de la polarisation de détection (σ^+ ou σ^-). Notre monochromateur ne permet pas de distinguer ces deux lorentziennes (δ_1 vaut typiquement $30\mu\text{eV}$ dans nos boîtes quantiques, à comparer à la résolution du monochromateur de $140\mu\text{eV}$) : nous détectons une lorentzienne simple approchée.

Nous montrons en Annexe B que la présence d'un champ nucléaire effectif dans la boîte décale simplement cette lorentzienne approchée d'une énergie $\frac{\delta_n}{2}$ (resp. $-\frac{\delta_n}{2}$) lorsqu'on détecte la lumière avec une polarisation σ^+ (resp. σ^-). Ainsi, la différence d'énergie entre les deux raies détectées avec une polarisation σ^+ et σ^- correspond bien au déplacement Overhauser δ_n . Grâce à cette procédure de fit, nous mesurons donc *effectivement* le déplacement Overhauser de l'exciton neutre.

Une mesure plus directe est réalisée à l'aide de l'interféromètre de Fabry-Pérot présenté dans le chapitre 2 : nous utilisons une spectroscopie de plus haute résolution pour mettre en évidence la structure fine de l'exciton neutre et du trion. Cette technique permet de confirmer les résultats déduits de notre procédure de fit théorique et de les comprendre de façon plus intuitive par une simple "visualisation" de la structure fine.

3.3 Présentation des résultats obtenus sur chaque complexe excitonique et interprétation

Les résultats que nous présentons dans cette partie ont été obtenus sur une même boîte quantique.

Nous observons pour cette boîte trois transitions excitoniques différentes. Elles résultent de l'intégration des spectres de photoluminescence stationnaire sur un temps long devant le temps de corrélation des fluctuations de charge de la boîte. Chaque transition a été identifiée grâce aux éléments décrits dans le paragraphe 3.2.2. Elles sont présentées sur la Figure 3.3 du paragraphe précédent. Nous distinguons le *trion*, l'*exciton neutre* et le *bi-exciton*. L'énergie d'échange anisotrope δ_1 pour cette boîte quantique vaut $9\mu\text{eV}$.

Nous nous intéressons ici au comportement particulier de chaque complexe excitonique sous excitation polarisée, ce qui donne lieu à des phénomènes originaux que nous cherchons à interpréter.

Pour l'exciton chargé, nous mettons en évidence une polarisation circulaire et un déplacement Overhauser sous excitation polarisée circulairement, par des études de spectroscopie de photoluminescence d'excitation, et par des études en puissance. Une polarisation nucléaire dynamique se construit dans la boîte même en l'absence de champ magnétique externe. Elle est à l'origine d'un champ nucléaire effectif au sein de la boîte. Nous présenterons dans une première partie les différentes étapes qui interviennent dans ce processus.

Sur l'exciton neutre, nous mesurons un déplacement Overhauser, une polarisation linéaire et une polarisation circulaire. Nous l'expliquons par une modification de ses états propres liée à la présence d'un champ nucléaire effectif. Nous interpréterons ce résultat en utilisant deux approches différentes.

Enfin, sur le bi-exciton, nous mesurons un déplacement Overhauser, mais ni polarisation linéaire, ni polarisation circulaire de luminescence.

3.3.1 Le trion

Nous avons mesuré le taux de polarisation circulaire de la luminescence et le déplacement Overhauser du trion X^+ en fonction de l'énergie du laser d'excitation, pour différents états de polarisation de celui-ci. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3.7 :

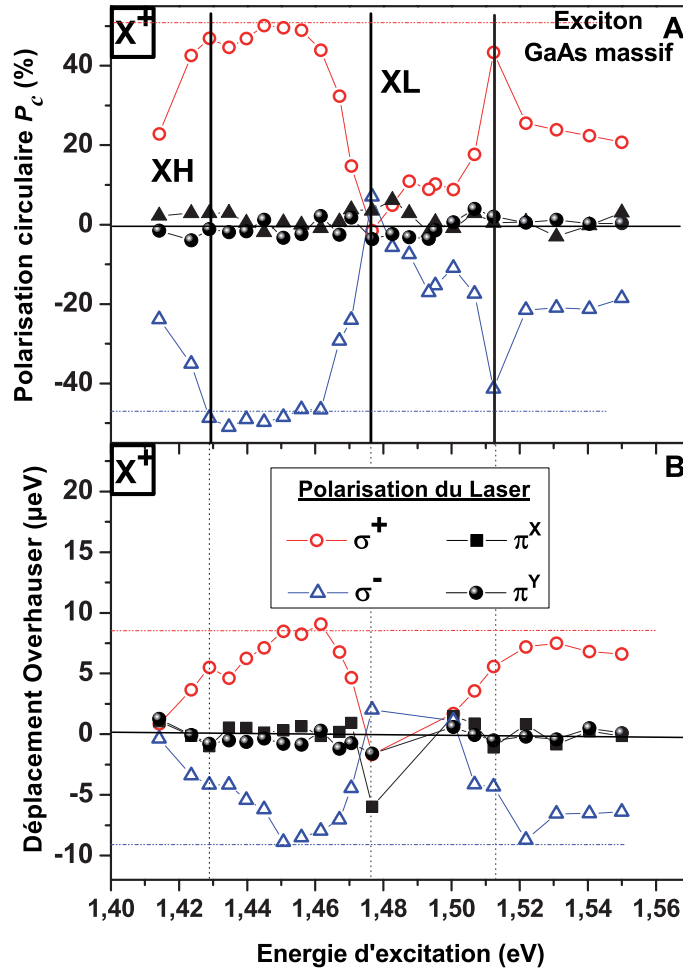


FIGURE 3.7 – Spectres d'excitation du déplacement Overhauser δ_n et du taux de polarisation circulaire P_c de la luminescence du trion X^+ . Différents états de polarisation du laser sont étudiés. Nous détectons à l'énergie de la transition $E_{X^+}=1.3621$ eV. XL , XH : exciton léger et exciton lourd de la couche de mouillage.

Le trion X^+ , dans son état fondamental, se compose de deux trous appariés de spins anti-parallèles qui forment un singulet (dans l'état de valence le plus haut) et d'un seul électron (dans l'état de conduction le plus bas). La polarisation circulaire de la luminescence que nous mesurons est donc directement liée à l'état de spin du porteur non apparié, c'est-à-dire l'électron.

Une analyse fine du taux de polarisation circulaire de luminescence *sous excitation polarisée circulairement* de la Figure 3.7 va nous permettre d'obtenir des informations intéressantes sur notre échantillon.

Nous pouvons distinguer deux grands domaines d'énergie :

- On étudie tout d'abord la gamme d'énergie allant de 1.50 eV à 1.56 eV. On observe dans cette zone un pic de polarisation circulaire pour une énergie du laser de 1.512 eV (Figure 3.8(b)). Parallèlement, l'intensité de l'émission du trion X^+ (Figure 3.8(a)) présente un pic d'efficacité pour une énergie de 1.522 eV.

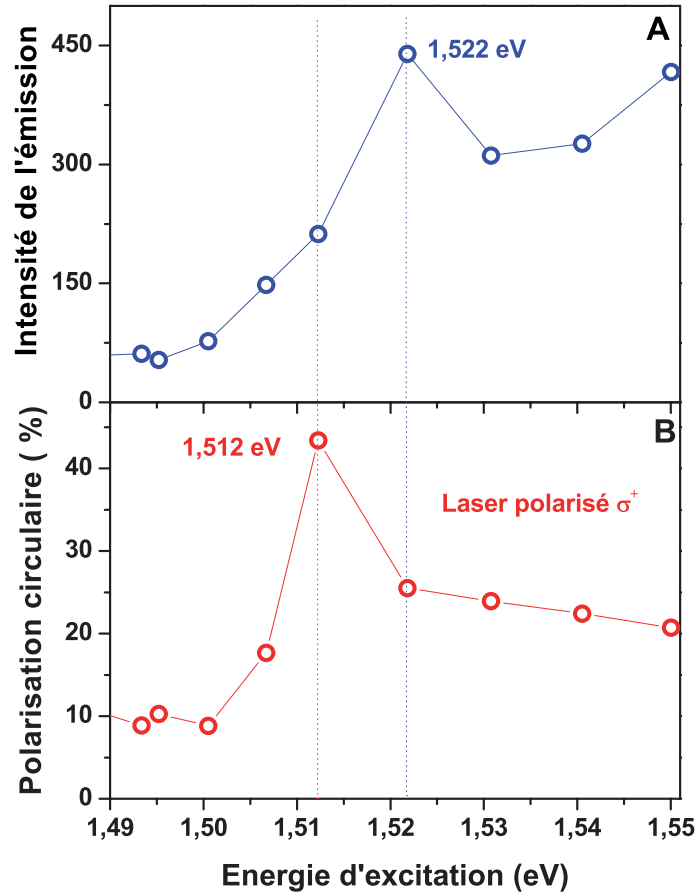


FIGURE 3.8 – Evolution de l'intensité de l'émission et du taux de polarisation circulaire du trion X^+ en fonction de l'énergie du laser d'excitation. Les pics d'efficacité de détection sont obtenus respectivement pour $E_{Laser}=1.522$ eV (Intensité d'émission) et $E_{Laser}=1.512$ eV (Taux de polarisation circulaire).

Il est intéressant de confronter ces deux résultats :

- L'intensité d'émission du trion X^+ reflète la courbe d'absorption du GaAs massif : le pic d'efficacité de luminescence que nous mesurons pour une énergie de 1.522 eV correspond donc vraisemblablement à l'énergie de l'exciton libre du massif, qui vaut 1.5156 eV. L'écart avec la valeur théorique provient de l'imprécision de la mesure (pas en énergie $\Delta E \sim 10 \text{ meV}$).
- Le pic de polarisation de la Figure 3.8(b) est légèrement décalé vers les basses énergies par rapport à l'énergie de l'exciton libre. De plus, ce dernier relaxe très rapidement son spin (en $\sim 10 \text{ ps}$) selon un mécanisme de relaxation très efficace dû au splitting longitudinal-transverse [107]. Ce mécanisme est détaillé dans le chapitre de l'ouvrage de référence *Optical Orientation* [37] écrit par R. Planel et B. à la Guillaume. A cette énergie, nous devrions donc observer un taux de polarisation circulaire faible.

Le pic de polarisation de la Figure 3.8(b) pourrait correspondre à l'énergie de l'exciton piégé sur accepteur neutre ($E_{A0} = 1.5125 \text{ eV}$). En effet, dans ce complexe, les trous forment un singulet de spin et l'électron non apparié est confiné par le potentiel électrostatique. De ce fait, le temps de relaxation de spin de l'électron s'allonge, ce qui pourrait expliquer le pic de polarisation circulaire observé.

- On s'intéresse maintenant à la gamme d'énergie allant de 1.42 eV à 1.49 eV. Dans ce domaine, la polarisation circulaire suit une évolution analogue à celle mesurée en PLE sur les puits $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ [108] et $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ [109]. Ceci signifie que, dans notre échantillon, l'orientation du spin de l'électron sous excitation polarisée circulairement est partiellement maintenue. La capture de l'électron de la couche de mouillage vers la boîte quantique se fait en effet en quelques dizaines de picosecondes [39], c'est-à-dire en un temps plus court que le temps de relaxation de spin de l'électron dans la couche de mouillage (qui est de l'ordre de la centaine de picosecondes aux températures cryogéniques ($T = 2\text{-}5 \text{ K}$) [38]).

La signature en polarisation de la Figure 3.7 reflète les règles de sélection du puits quantique à l'absorption :

- A partir de l'énergie de l'exciton lourd (~ 1.43 eV) jusqu'à une énergie de 1.46 eV, elles se traduisent par un plateau à des valeurs de polarisation circulaire élevées ($\sim 50\%$). Il s'explique simplement par les variations de l'absorption de lumière polarisée lorsqu'on augmente l'énergie d'excitation, révélant d'abord l'exciton lourd puis la bande de trous lourds-bande d'électron.
- La descente qui s'amorce ensuite est due aux mélanges des états de trous lourds et de trous légers lorsqu'on s'approche de l'énergie de la bande de trous légers (située à 1,475 eV).
- Enfin, lorsque l'énergie du laser est résonante avec l'énergie de l'exciton léger (~ 1.475 eV), on observe un creux du taux de polarisation circulaire. En effet, à cette énergie, la force d'oscillateur des transitions bande de trous lourds-bande d'électron devient comparable à celle de l'exciton léger, qui génère des électrons de spins opposés (cf chapitre 1).
 Nous pouvons noter que l'écart énergétique mesuré entre l'exciton lourd (~ 1.43 eV) et l'exciton léger (~ 1.475 eV) vaut environ 45 meV, ce qui est typique d'un puits *InGaAs* contraint dans GaAs contenant $\sim 12\%$ d'Indium [108].
- Enfin, pour des énergies plus élevées ($E > 1.475$ eV), la polarisation remonte. Elle atteint seulement $\frac{1}{5}$ de la polarisation maximale du plateau en raison du mélange des états de trous lourds et de trous légers.

Grâce à ces observations simples, nous avons identifié la position en énergie de l'exciton léger ($E_{XL}=1.475$ eV) et de l'exciton lourd ($E_{XH}=1.43$ eV) de la couche de mouillage de l'échantillon.

Nous avons également mesuré sur la Figure 3.9 l'énergie de la transition excitonique X^+ en fonction de l'énergie du laser d'excitation. La polarisation du laser est choisie linéaire, de façon à s'affranchir des effets nucléaires.

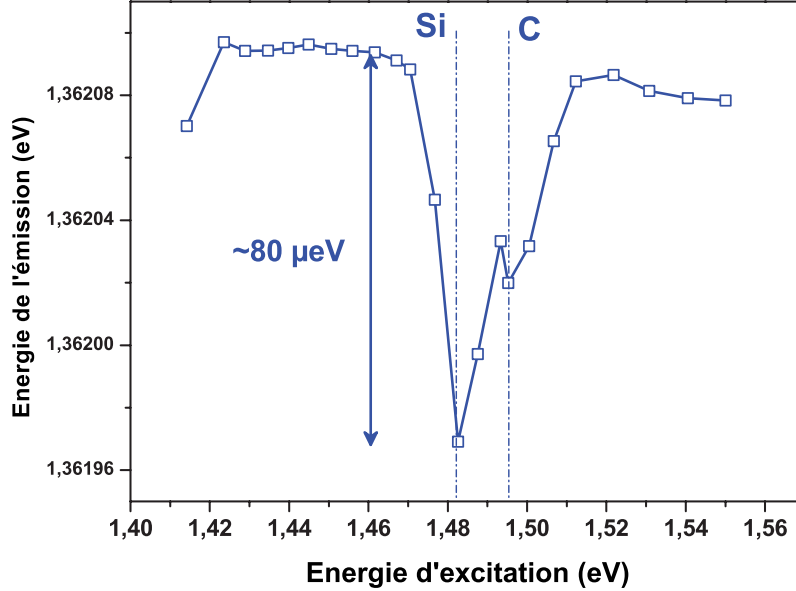


FIGURE 3.9 – Evolution de l'énergie de l'émission du trion X^+ en fonction de l'énergie du laser d'excitation. Deux décalages du pic d'émission de X^+ vers les basses énergies sont mesurés pour $E_{Laser}=1.482$ eV et $E_{Laser}=1.495$ eV

Grâce à ces mesures, nous pouvons obtenir des informations complémentaires sur notre échantillon, qui permettront d'affiner nos hypothèses concernant la formation du complexe X^+ dans notre structure. Nous constatons deux chutes brutales de l'énergie de la transition radiative de X^+ . Elles apparaissent lorsque l'énergie du laser vaut respectivement 1.482 eV et 1.495 eV. Ces décalages du pic d'émission de X^+ peuvent s'expliquer par un phénomène de type effet Stark confiné. En effet :

1. D'après les tables données en [105] pour les impuretés dans GaAs, le silicium accepteur (en site As) et le carbone se situent respectivement à 35.2 meV et à 26.7 meV de la bande de valence de GaAs. Compte tenu de l'imprécision de nos mesures (pas en énergie $\Delta E \sim 10$ meV), on peut penser que les deux énergies du laser de 1.482 eV et 1.495 eV correspondent à l'énergie de transition d'un accepteur de type silicium ou carbone vers la bande de conduction. De plus, le carbone est présent de façon résiduelle dans le bâti d'épitaxie, et le silicium a été volontairement introduit lors de la croissance de l'échantillon : ces deux aspects confortent notre hypothèse.

2. L'excitation d'un électron du niveau accepteur considéré (le carbone ou le silicium) vers la bande de conduction modifie la charge de l'accepteur, qui devient neutre ($A^- + h\nu \rightarrow A^0 + e^-$). Si l'électron présent dans la boîte est suffisamment proche de l'accepteur⁶, ce dernier ressent une augmentation du champ électrique, qui se traduit par une chute de l'énergie de la transition radiative.

L'observation d'un décalage vers les basses énergies de l'émission de X^+ par effet Stark confiné confirme l'hypothèse de l'existence d'accepteurs au voisinage des boîtes.

Par ailleurs, les variations de l'intensité de l'émission du trion X^+ et de l'exciton neutre X_0 en fonction de l'énergie du laser d'excitation sont mises en regard sur la Figure 3.10 :

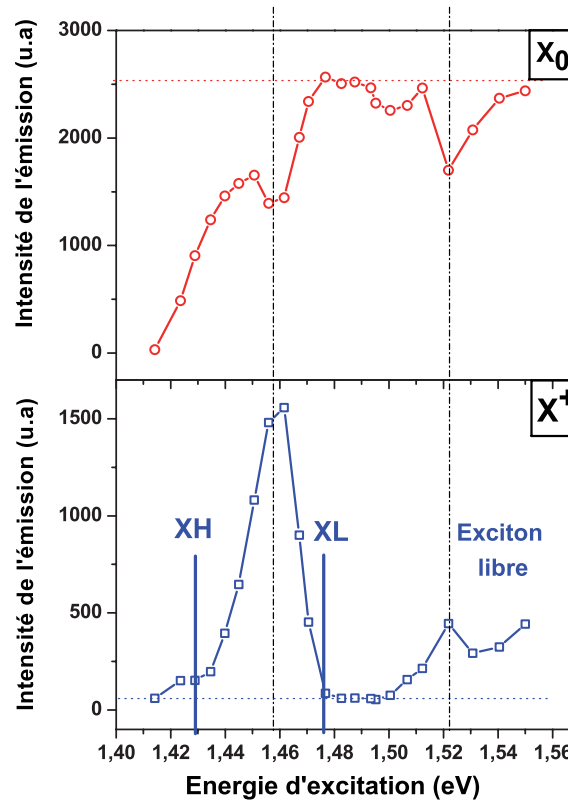


FIGURE 3.10 – Les évolutions de l'intensité d'émission du trion X^+ et de l'exciton neutre X_0 en fonction de l'énergie du laser d'excitation sont mises en regard. Les deux courbes d'émission présentent une évolution complémentaire. XL, XH : exciton léger et exciton lourd de la couche de mouillage.

6. Cela sera vérifié pour le silicium, localisé sur une monocouche à 2nm du plan de boîtes, d'après la Figure 3.1. Le carbone est en revanche diffus dans la structure.

Tant que l'énergie des photons incidents est inférieure aux énergies de transition accepteur-bande de conduction ($E < 1,48$ eV), nous excitons sélectivement la couche de mouillage de l'échantillon. La paire e-/trou créée sera rapidement capturée par la boîte quantique. Comme l'efficacité de génération de X^+ est plus forte que celle de l'exciton neutre (Figure 3.10), ceci renforce l'hypothèse d'une boîte quantique chargée d'un trou une grande partie du temps.

Les deux courbes d'émission du trion et de l'exciton neutre présentent une évolution complémentaire : la formation de l'un se fait au détriment de l'autre. L'interprétation de ce phénomène nécessiterait une étude spécifique complète qui dépasse le cadre de ce manuscrit.

Le déplacement Overhauser du trion Le trion X^+ , dans son état fondamental, se compose de deux trous appariés de spins anti-parallèles qui forment un singulet (dans l'état de valence le plus haut) et d'un seul électron (dans l'état de conduction le plus bas). Cette configuration de spin annule les termes d'échange électron/trou deux à deux, et rend possible la polarisation dynamique des noyaux par le spin de l'électron. Sur la Figure 3.7, lorsque la polarisation d'excitation est circulaire, nous mesurons, outre une luminescence polarisée circulairement, un déplacement Overhauser, qui traduit la présence d'un champ nucléaire effectif ressenti par l'électron. Le signe de l'effet dépend de l'hélicité de l'excitation. En revanche, sous excitation linéaire, on ne mesure ni polarisation circulaire de luminescence, ni déplacement Overhauser.

Ce phénomène de construction d'un champ nucléaire en l'absence de champ magnétique externe, surprenant de prime abord, a déjà été observé [87]. Nous pouvons l'expliquer de la manière suivante :

1. En régime permanent, sous pompage optique polarisé circulairement, le spin de l'électron crée un champ Knight $\vec{B}_e$ ressenti par les noyaux. Le champ nucléaire généré par transfert du spin électronique vers les noyaux s'écrit alors [87, 91, 42] :

$$\vec{B}_N = f \frac{\vec{B}_e(\vec{B}_e \cdot \langle \vec{S} \rangle)}{|\vec{B}_e|^2 + \tilde{B}_L^2} \quad (3.27)$$

f est un facteur de proportionnalité, $\vec{B}_e$ est le champ Knight créé par l'électron

polarisé et $\tilde{B}_L$ est le champ local effectif (de l'ordre de quelques Gauss).

Pour que le champ nucléaire se construise efficacement dans la boîte, il faut satisfaire à deux conditions :

$$\begin{array}{l} ||\vec{B}_e|| > \tilde{B}_L \text{ (condition 1)} \\ \text{et } ||\vec{B}_N|| > ||\Delta\vec{B}_N|| \text{ (condition 2)} \end{array} \quad (3.28)$$

Le champ Knight doit supplanter le champ local, de l'ordre de quelques Gauss (*condition 1*). D'autre part, le champ nucléaire $\vec{B}_N$ doit surpasser les fluctuations (de l'ordre de 45 mT) occasionnées par le champ local ou par l'inhomogénéité du champ Knight dans la boîte, car sinon, le spin électronique relaxe selon le processus décrit par I. A. Merkulov, A. L. Efros et M. Rosen [110] (*condition 2*).

2. En régime d'amorçage, pour que le champ nucléaire puisse se construire, il faut que le spin nucléaire soit préservé *au départ* des fluctuations du champ local. Nous pouvons penser que c'est l'effet quadripolaire qui joue ce rôle. Dans le cas d'une contrainte bi-axiale, l'axe principal du tenseur gradient de champ électrique est orienté selon (Oz) (Z=z dans l'expression 3.23). De ce fait, l'effet quadripolaire "protège" les spins nucléaires de l'effet dépolarisant du champ local [89].

C'est *a priori* ce qui se produit dans nos expériences. Pour confirmer cette hypothèse, nous pouvons évaluer l'ordre de grandeur du champ Knight $\vec{B}_e$ et du champ nucléaire effectif $\vec{B}_N$ à partir de nos données expérimentales.

Pour évaluer l'ordre de grandeur du champ Knight dans notre expérience, nous utilisons l'expression 3.20, que nous rappelons ici :

$$|\vec{B}_e^j| = f_e \frac{2A^j \langle S \rangle}{\hbar \gamma_I N^I}$$

Le taux de polarisation circulaire de luminescence P_c que nous mesurons prend une valeur maximale de 50% sur la Figure 3.7, ce qui correspond à $\langle S \rangle \sim 0,25$. Ainsi, dans

une boîte quantique contenant 10^5 noyaux, et pour un facteur d'occupation f_e de 0,1, le champ Knight atteint une valeur de l'ordre de 30 Gauss.

Cette estimation simple est satisfaisante car elle montre que, dans notre expérience, le champ Knight supplante le champ local de quelques Gauss en régime stationnaire (condition 1). En l'absence de champ magnétique externe, on voit donc qu'il est possible, dans les boîtes quantiques de type Stransky-Krastanov, de polariser les noyaux.

Le champ nucléaire effectif correspondant au déplacement Overhauser mesuré expérimentalement vaut (d'après 3.26) :

$$|B_n^{\max}| = \frac{\delta_n^{\max}}{g_e \mu_B} \quad (3.29)$$

Le déplacement Overhauser δ_n que nous mesurons prend une valeur maximale de $10\mu\text{eV}$, comme le montrent les Figures 3.7 et 3.11. Nous prenons 0.48 pour le facteur de Landé g_e de l'électron [86], et nous obtenons un champ nucléaire effectif maximal de 360 mT. Ce champ dépasse les fluctuations de champ nucléaire évoquées par Merkulov, qui sont de l'ordre de 45 mT [110](condition 2).

Ces calculs basés sur nos mesures expérimentales expliquent la présence d'un champ nucléaire effectif dans la boîte. Il stabilise en retour le spin de l'électron, ce qui conduit à la mesure d'une forte polarisation circulaire de luminescence.

L'influence de la puissance d'excitation a été étudiée, dans le cas d'une excitation polarisée linéairement et circulairement. L'énergie du laser est fixée à 1.44 eV pour ces études. A cette énergie, les études en PLE (Figure 3.7) montrent que le taux de polarisation circulaire et le déplacement Overhauser du trion sont élevés. Lorsque le laser est polarisé circulairement, on observe une augmentation du taux de polarisation circulaire et du déplacement Overhauser du trion avec la puissance du laser d'excitation :

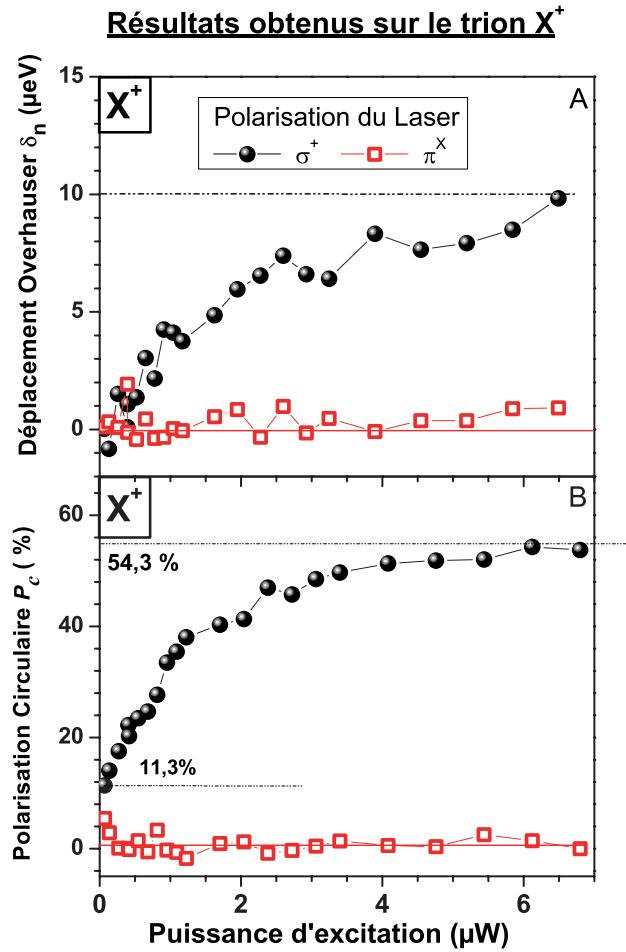


FIGURE 3.11 – Mesure du taux de polarisation circulaire et du déplacement Overhauser du trion en fonction de la puissance du laser d'excitation pour $E_{Laser}=1.44$ eV. Nous constatons l'augmentation des taux de polarisation circulaire et du déplacement Overhauser avec la puissance lorsque le laser est polarisé circulairement.

Lorsqu'on augmente la puissance du laser d'excitation, le facteur d'occupation de l'électron dans la boîte f_e augmente. Dans le cas d'une excitation polarisée circulairement, le champ Knight va donc augmenter progressivement avec la puissance, comme le montre la relation 3.19. Lorsqu'il supplante le champ local $\tilde{B}_L$ de quelques Gauss, la construction d'une polarisation dynamique nucléaire devient possible. Cela conduit à la mesure d'un déplacement Overhauser δ_n qui augmente progressivement avec la puissance.

Pour mieux le comprendre, nous pouvons écrire l'équation décrivant l'évolution de la dynamique de polarisation nucléaire [91, 27] :

$$\frac{d\langle I_z \rangle}{dt} = -\frac{1}{T_{1e}} \left(\langle I_z \rangle - \tilde{Q} \langle S_z \rangle \right) - \frac{\langle I_z \rangle}{T_d} \quad (3.30)$$

Avec :

$$\frac{1}{T_{1e}} = \left(\frac{2\tilde{A}}{N^l \hbar} \right)^2 \frac{2f_e \tau_c}{1 + \omega_n^2 \tau_c^2} \quad (3.31)$$

$\tilde{A}$ est une constante hyperfine moyenne qui dépend de la nature des noyaux et de leur fraction respective dans la boîte ($\tilde{A} \sim 50 \mu\text{eV}$ dans les boîtes quantiques *InAs/GaAs*), f_e est le facteur d'occupation de l'électron dans la boîte, τ_c est le temps de corrélation de l'interaction hyperfine (qui dépend de la présence de l'électron dans la boîte), et $\omega_n = \frac{\delta_n}{\hbar}$.

Le temps T_{1e} est le temps de construction de la polarisation nucléaire et T_d est le temps de fuite qui caractérise les pertes du système (vers le réseau par exemple).

Enfin, $\tilde{Q}$ s'exprime en fonction du spin nucléaire et du spin de l'électron, moyennés dans la boîte :

$$\tilde{Q} = \frac{\overline{I(I+1)}}{S(S+1)} = \frac{4}{3} \sum_j x_j I^j (I^j + 1) \quad (3.32)$$

x_j représente la fraction respective de chaque espèce nucléaire (In, Ga, As) dans la boîte.

$\tilde{Q}$ vaut ~ 15 dans les boîtes quantiques *InAs/GaAs*.

En régime stationnaire, l'équation d'évolution 3.30 s'écrit :

$$\langle I_z \rangle = \frac{\tilde{Q} \langle S_z \rangle}{1 + \frac{T_{1e}}{T_d}} \quad (3.33)$$

Lorsque la puissance d'excitation augmente, f_e augmente et le temps de construction de la polarisation nucléaire T_{1e} diminue (expression 3.31). De cette façon, en régime stationnaire, $\langle I_z \rangle$ augmente avec la puissance d'excitation. Ceci explique l'augmentation du déplacement Overhauser δ_n , qui est proportionnel à la polarisation nucléaire du système $\langle I_z \rangle$. Le champ nucléaire effectif créé stabilise le spin de l'électron, et la polarisation circulaire de la luminescence augmente.

Finalement, bien que le champ magnétique externe soit nul, le taux de polarisation circulaire atteint la valeur de 54%, avec un déplacement Overhauser de $10\mu\text{eV}$, ce qui correspond à une polarisation nucléaire de 6% environ.

3.3.2 L'exciton neutre

Nous avons mesuré les taux de polarisation circulaire et linéaire de la luminescence ainsi que le déplacement Overhauser de l'exciton neutre X_0 en fonction de l'énergie du laser d'excitation, pour différents états de polarisation de celui-ci. Nous présentons ces résultats sur la Figure 3.12. Dans la boîte étudiée, l'énergie d'échange anisotrope de l'exciton neutre δ_1 vaut seulement $9 \mu\text{eV}$.

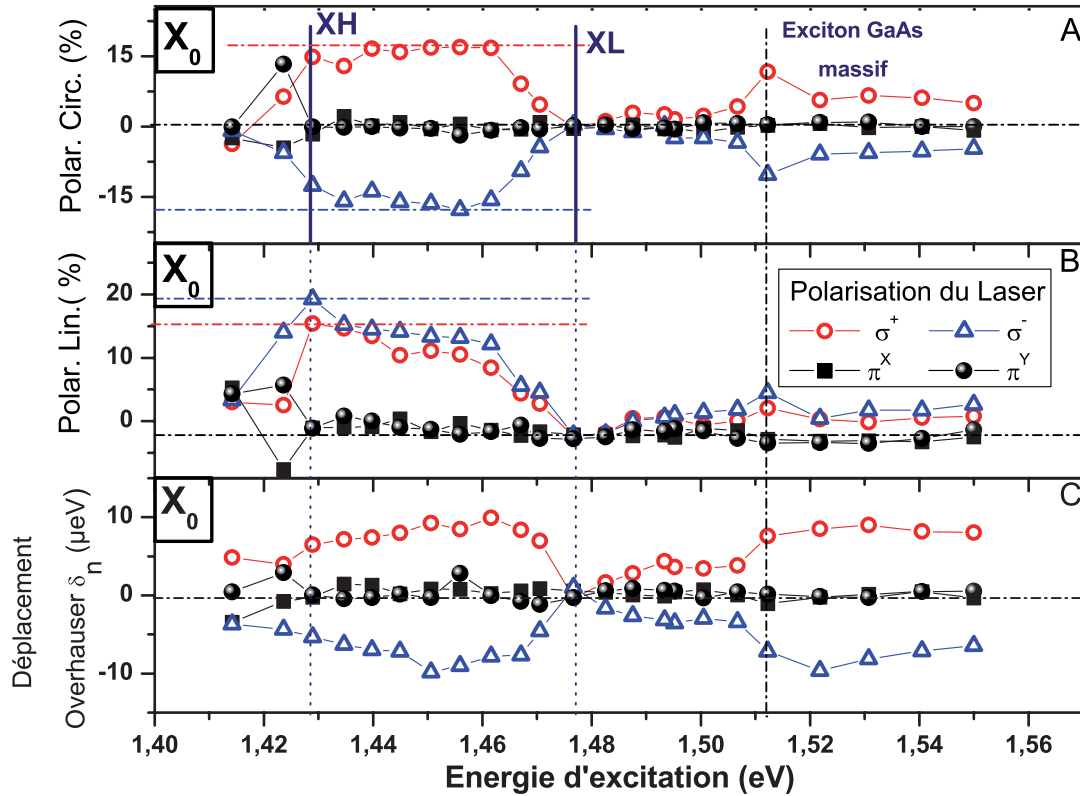


FIGURE 3.12 – Spectres d'excitation du déplacement Overhauser δ_n et des taux de polarisation circulaire et linéaire de luminescence de l'exciton neutre X_0 . δ_1 vaut $9 \mu\text{eV}$. Différents états de polarisation du laser sont étudiés. Nous détectons à l'énergie de la transition $E_{X_0}=1.3536 \text{ eV}$. XL , XH : exciton léger et exciton lourd de la couche de mouillage

Cette première étude confirme les positions en énergie de l'exciton lourd et de l'exciton léger de la couche de mouillage de l'échantillon identifiées dans le paragraphe 3.3.1.

L'influence de la puissance d'excitation a également été étudiée. L'énergie du laser est alors fixée à 1.44 eV. Nous constatons que les taux de polarisation circulaire et linéaire mesurés sur l'exciton neutre et le déplacement Overhauser augmentent avec la puissance d'excitation.

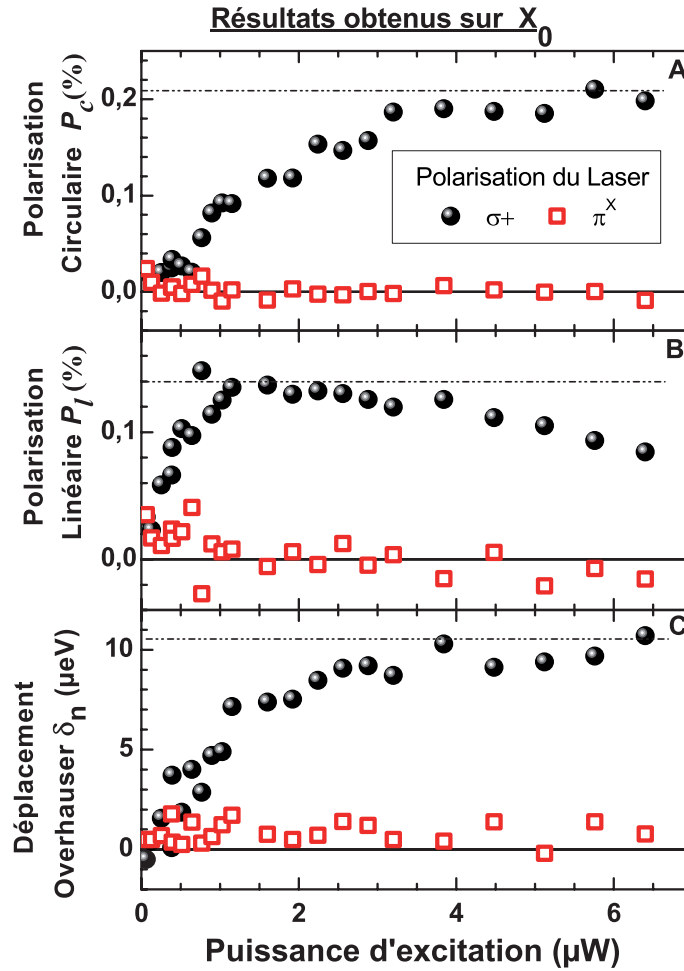


FIGURE 3.13 – Influence de la puissance d'excitation sur les taux de polarisation circulaire et linéaire de luminescence et le déplacement Overhauser de l'exciton neutre pour $E_{\text{Laser}} = 1.44$ eV. Lorsque le laser est polarisé circulairement, on constate une augmentation du déplacement Overhauser et des taux de polarisation linéaire et circulaire de l'exciton neutre avec la puissance.

Ces deux études (par spectroscopie d'excitation de la photoluminescence et en fonction de la puissance) mettent en évidence l'apparition d'une polarisation circulaire et d'une polarisation linéaire sur l'exciton neutre lorsque le laser d'excitation est polarisé circulairement. Ces observations sont surprenantes de prime abord, car :

1. La polarisation linéaire de la luminescence de l'exciton neutre atteint 11% dans notre expérience lorsque le laser est polarisé circulairement. Ce résultat ne peut pas s'expliquer par un éventuel déséquilibre thermodynamique qui s'établirait entre les populations des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Si l'état $|X\rangle$ se situe à une énergie supérieure de δ_1 par rapport à l'état $|Y\rangle$, le peuplement de ces états, proportionnel à $e^{\frac{+\delta_1}{2k_B T}}$ et $e^{\frac{-\delta_1}{2k_B T}}$ respectivement, conduirait à une polarisation linéaire de l'émission qui vaudrait :

$$P_{Lin} = th\left(\frac{\delta_1}{2k_B T}\right) \quad (3.34)$$

Ce résultat est indépendant de la polarisation de l'excitation, et conduit à une polarisation linéaire négligeable à 4K, en contradiction avec nos résultats expérimentaux.

2. D'autre part, compte tenu de la structure fine de l'exciton neutre, nous ne devrions pas observer de polarisation circulaire. En effet, l'interaction d'échange entre l'électron et le trou a pour effet de lever la dégénérescence des états propres $J_z = |\pm 1\rangle$ de l'exciton brillant. Ils se mettent sous la forme de deux états propres non dégénérés $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, séparés de l'énergie d'échange anisotrope δ_1 (cf chapitre 1). Le spin de l'exciton photocréé par une lumière polarisée circulairement se trouve alors moyenné à 0 en un temps typique de $\frac{\hbar}{\delta_1} \sim 120\text{ps}$ [111]. Les spins des deux particules (l'électron et le trou) précessent simultanément dans un champ magnétique transverse associé au terme d'échange.

Si à l'instant initial ($t=0$), on prépare la boîte quantique dans un état $J_z = |\pm 1\rangle$ à l'aide d'une lumière polarisée circulairement, et que l'on néglige les phénomènes de relaxation de spin à l'échelle du temps de vie [10], les intensités co- et contra-polarisées sont données par :

$$I_{\pm}(t) = \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rad}}\right) \left[1 \pm \cos\left(\frac{\delta_1}{\hbar} t\right)\right] \quad (3.35)$$

τ_{rad} est le temps de vie radiatif, et δ_1 est l'énergie d'échange anisotrope.

Finalement, la valeur moyenne obtenue en intégrant temporellement les intensités résolues en polarisation dépendra du rapport entre la durée de vie radiative τ_{rad} et la période des battements quantiques $\frac{h}{\delta_1}$. La polarisation circulaire de la luminescence s'exprime donc ainsi :

$$P_c = \frac{P_c^0}{1 + \omega^2 \tau_{rad}^2} \quad (3.36)$$

Avec $\hbar\omega = \delta_1$, énergie d'échange anisotrope.

Dans la boîte quantique étudiée, l'énergie d'échange anisotrope δ_1 de l'exciton neutre vaut $9 \mu\text{eV}$, et le temps de vie radiatif vaut environ 800ps . La polarisation circulaire de la luminescence de l'exciton neutre en l'absence de champ magnétique externe ne devrait donc pas excéder quelques pourcents dans notre système.

Or, la polarisation circulaire de luminescence que nous mesurons atteint 22% : elle est donc supérieure d'un ordre de grandeur.

En conclusion, lorsque le laser est polarisé circulairement et en l'absence de champ magnétique externe, la luminescence de l'exciton neutre *ne devrait pas* être polarisée linéairement ou circulairement.

Nous avons mis en évidence dans le paragraphe 3.3.1 la création d'une polarisation nucléaire dynamique par l'intermédiaire du trion. Comme nous l'avons vu, elle est à l'origine d'un champ nucléaire effectif (appelé *Champ Overhauser*) présent dans la boîte. Nous pensons que l'exciton neutre *ressent* le champ nucléaire effectif *créé par le trion*, qui agit sur lui comme le ferait un champ magnétique externe : les états propres de l'exciton neutre vont donc se circulariser.

A priori, l'exciton neutre *seul* ne peut pas créer de polarisation nucléaire dans la boîte en raison de l'interaction d'échange électron-trou. En effet, les excitons brillants et noirs ne se mélangent pas : ils sont séparés par l'énergie d'échange courte portée δ_0 . Or, l'hamiltonien hyperfin couple uniquement les états noirs et les états brillants. L'interaction hyperfine sera donc inhibée par la différence d'énergie δ_0 , qui vaut environ $500\mu\text{eV}$ dans les boîtes quantiques *InAs/GaAs* que nous étudions, soit un

ordre de grandeur de plus que A^j typiquement.

Nous avons confirmé cela expérimentalement grâce à des études en PLE effectuées dans le même échantillon sur une autre boîte quantique pour un exciton neutre avec une énergie d'échange anisotrope de $34 \mu\text{eV}$. Pour cette boîte, les taux de polarisation circulaire et linéaire de luminescence de l'exciton neutre sont nuls, tandis que le déplacement Overhauser suit exactement celui mesuré sur le trion, et atteint la même valeur maximale. Ces résultats sont présentés sur la Figure 3.14. Contrairement au cas présenté sur la Figure 3.12, du fait de la faible valeur de δ_n en comparaison de δ_1 , le champ nucléaire est négligeable devant le champ magnétique transverse lié à l'interaction d'échange électron-trou. Ceci est par ailleurs confirmé quantitativement par l'expression de la polarisation circulaire 3.65 obtenue à l'aide du formalisme de pseudo-spin fictif.

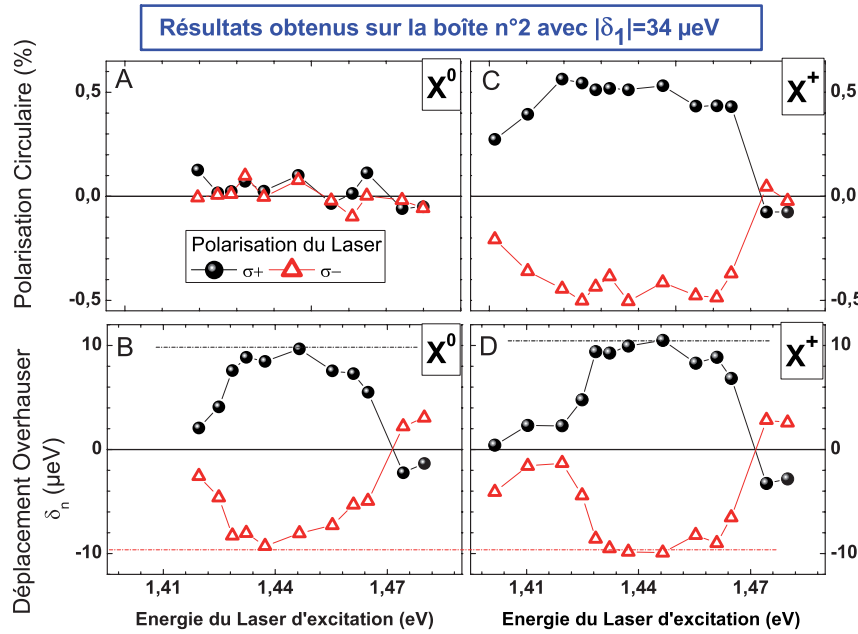


FIGURE 3.14 – Spectres d'excitation du déplacement Overhauser et de la polarisation circulaire du trion X^+ et de l'exciton X_0 (avec $\delta_1 = 34 \mu\text{eV}$) : un déplacement Overhauser identique est mesuré sur l'exciton neutre X_0 et le trion X^+ . Il traduit la présence d'un champ nucléaire effectif au sein de la boîte. La mesure d'une polarisation circulaire sur la luminescence du trion, et parallèlement l'absence de polarisation linéaire et circulaire sur l'exciton neutre montrent que la polarisation nucléaire se construit par l'intermédiaire du trion.

Ceci est la preuve expérimentale que c'est le trion X^+ qui crée la polarisation nucléaire au sein de la boîte. Nous adoptons donc l'hypothèse d'un champ nucléaire qui serait *créé* par le trion et *ressenti* par l'exciton neutre.

L'application d'un champ magnétique externe longitudinal va écranter le champ d'échange anisotrope de l'exciton neutre [112]. Cela permet de "restaurer" la symétrie de la boîte quantique. Ainsi, en présence d'un champ magnétique longitudinal B_Z , l'hamiltonien qui décrit les états excitoniques brillants devient :

$$\hat{H}_b = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 + \delta_z & \delta_1 \\ \delta_1 & \delta_0 - \delta_z \end{pmatrix} \quad (3.37)$$

où $\delta_z = g_X \mu_B B_Z$. g_X désigne le facteur de Landé de l'exciton et μ_B le magnéton de Bohr.

Le champ magnétique longitudinal va donc circulariser les états propres de l'exciton neutre. Ils deviennent elliptiques et s'écrivent dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle\}$ [113] :

$$|EL_1\rangle = \mathcal{N}_1 \left(|+1\rangle + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} + \sqrt{1 + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} \right)^2} \right) |-1\rangle \right) \quad (3.38)$$

Pour la branche basse énergie.

Et :

$$|EL_2\rangle = \mathcal{N}_2 \left(|+1\rangle + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} - \sqrt{1 + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} \right)^2} \right) |-1\rangle \right) \quad (3.39)$$

Pour la branche haute énergie.

$\mathcal{N}_1$ et $\mathcal{N}_2$ désignent les facteurs de normalisation pour chacun de ces deux états. Ils s'expriment de la façon suivante :

$$\mathcal{N}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_z^2 + \delta_1 \delta_z \sqrt{1 + \frac{\delta_z^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (3.40)$$

$$\mathcal{N}_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_z^2 - \delta_1 \delta_z \sqrt{1 + \frac{\delta_z^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (3.41)$$

Lorsque $\delta_z \gg \delta_1$, les états elliptiques $|EL_1\rangle$ et $|EL_2\rangle$ tendent respectivement vers les états circulaires $|-1\rangle$ et $|+1\rangle$. Dans une boîte quantique *InAs/GaAs* avec une énergie d'échange anisotrope de $\delta_1=30\mu\text{eV}$, et compte tenu du facteur de Landé de l'électron, l'orientation optique de l'exciton neutre nécessite l'application d'un champ magnétique externe supérieur au Tesla.

Dans notre expérience, le déplacement Overhauser δ_n joue le rôle de δ_z dans les équations 3.38 et 3.39. Comme il est de l'ordre de la centaine de mT (conformément au calcul fait en 3.29), les états propres de l'exciton ne se circularisent pas complètement : ils deviennent *elliptiques*.

Calcul des taux de polarisation circulaire et linéaire de l'exciton neutre

On peut écrire les deux nouveaux états de l'exciton neutre, d'énergies respectives E_+ et E_- , de la façon suivante :

$$|\phi_+\rangle = \alpha|X\rangle + i\beta|Y\rangle = \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}}|+1\rangle + \frac{\alpha - \beta}{\sqrt{2}}|-1\rangle \quad (3.42)$$

Et :

$$|\phi_-\rangle = \beta|X\rangle - i\alpha|Y\rangle = \frac{\beta - \alpha}{\sqrt{2}}|+1\rangle + \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}}|-1\rangle \quad (3.43)$$

Ces deux états sont normés, de sorte que :

$$\alpha^2 + \beta^2 = 1 \quad (3.44)$$

Les paramètres α et β peuvent s'exprimer en fonction de δ_1 et de δ_n , en utilisant les équations 3.38 et 3.39 :

$$\alpha = \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 - \delta_1\delta_n\sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} + \left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 + \delta_1\delta_n\sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (3.45)$$

Et :

$$\beta = \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 - \delta_1\delta_n\sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} - \left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 + \delta_1\delta_n\sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (3.46)$$

Nous pouvons calculer la polarisation circulaire et la polarisation linéaire de la luminescence de l'exciton neutre.

Par exemple, sous une excitation polarisée circulairement σ^+ , nous créons un exciton de moment angulaire $J_z = | +1 \rangle$ avec une probabilité de génération $\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}}\right)^2$ sur l'état $|\phi_+\rangle$ et $\left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}}\right)^2$ sur l'état $|\phi_-\rangle$. Chacun de ces états est alors peuplé différemment et émet une lumière co-polarisée par rapport à l'excitation avec une intensité qui vaut respectivement $\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}}\right)^2$ et $\left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}}\right)^2$.

L'intensité I_+ de la lumière co-polarisée sous excitation σ^+ vaudra donc :

$$I_+ = I_+^0 \cdot \left[\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \right] \quad (3.47)$$

Par un raisonnement analogue, nous trouvons l'intensité I_- contra-polarisée sous excitation σ^+ :

$$I_- = I_-^0 \cdot \left[\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \right] \quad (3.48)$$

La polarisation circulaire de la luminescence sous excitation σ^+ est donc :

$$P_{circ} = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} = 4\alpha^2\beta^2.P_c^0 \quad (3.49)$$

où P_c^0 est la polarisation circulaire initiale.

La polarisation linéaire de la luminescence peut être calculée de la même façon. Il faut cette fois-ci déterminer les intensités de luminescence détectées en polarisation linéaire Π^x et Π^y de chaque état, que nous noterons respectivement I^x et I^y . Nous trouvons :

$$P_{lin} = \frac{I^x - I^y}{I^x + I^y} = 2\alpha\beta(\alpha^2 - \beta^2).P_c^0 \quad (3.50)$$

où P_c^0 est la polarisation circulaire initiale.

Ce raisonnement simple n'est valable que si le temps de capture est *long* devant le temps de précession du spin dans la boîte. Il permet de comprendre que la

modification des états propres de l'exciton neutre conduit à la mesure d'une polarisation linéaire et d'une polarisation circulaire de luminescence. Nous retrouvons ces résultats dans le paragraphe suivant : nous proposons cette fois-ci une approche dynamique dans laquelle on ne raisonne plus sur des états stationnaires.

Approche dynamique de la sphère de Bloch Dans une approche simplifiée, nous allons considérer que la polarisation mesurée sur la luminescence de l'exciton peut être interprétée en terme de pseudo-spin effectif. Nous allons faire l'approximation que les deux seuls états qui peuvent être peuplés sont les états optiquement actifs de l'exciton $J_z = |\pm 1\rangle$, ou les deux combinaisons linéaires de ces états.

Ce n'est évidemment pas tout à fait exact. En effet, dans les expériences que nous présentons ici, l'excitation se fait hors résonance à une énergie proche du gap de la couche de mouillage.

Or, en raison du mélange entre les états de trous lourds et de trous légers dans la bande de valence, la mémoire sur l'orientation de spin du trou est perdue en $\sim 4ps$ [38, 114]. Il serait donc réaliste de considérer que nous peuplons également les états noirs de moment angulaire $J_z = |\pm 2\rangle$ lors de l'excitation. Comme les états brillants et les états noirs sont séparés d'une énergie δ_0 de $500\mu eV$ environ, on ne créera pas de superpositions cohérentes de ces états, mais simplement des excitons brillants et noirs, avec une probabilité de génération égale de 50% pour chaque état.

En effet :

$$\frac{\hbar}{\delta_0} \sim 1.2ps \ll \tau_{capture} \sim 30ps \text{ d'après [39]} \quad (3.51)$$

L'analyse de la dynamique de spin de l'exciton peut donc être restreinte aux deux états brillants qui, comme tout système à deux niveaux, peuvent être décrits par un pseudo-spin effectif de vecteur $\vec{S}=\frac{1}{2}$. L'axe de quantification (Oz) est choisi parallèle à la direction de propagation de la lumière, qui est aussi la direction de croissance des échantillons.

La matrice densité des états de spin peut s'exprimer en fonction de la valeur moyenne du spin effectif, pris en unité de $\hbar$:

$$\rho = \left(\frac{1}{2}Id + \langle \vec{S} \rangle \vec{\sigma}\right) \quad (3.52)$$

Id désigne la matrice identité, $\vec{\sigma}=(\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ les matrices de Pauli, et $\langle \vec{S} \rangle = Tr(\rho \cdot \vec{S})$.

Nous pouvons alors relier les éléments de la matrice densité écrite dans la base des états brillants $\{|+1\rangle, |-1\rangle\}$ aux trois composantes de spin moyen de la façon suivante :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{10} & \rho_{11} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} + \langle S_z \rangle & \langle S_x \rangle - i \langle S_y \rangle \\ \langle S_x \rangle + i \langle S_y \rangle & \frac{1}{2} - \langle S_z \rangle \end{pmatrix} \quad (3.53)$$

On peut alors écrire :

$$\langle S \rangle = \begin{pmatrix} \langle S_x \rangle \\ \langle S_y \rangle \\ \langle S_z \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Re(\rho_{01}) = \frac{\rho_{10} + \rho_{01}}{2} \\ \Im(\rho_{10}) = \frac{\rho_{10} - \rho_{01}}{2} \\ \frac{\rho_{00} - \rho_{11}}{2} \end{pmatrix} \quad (3.54)$$

Ce formalisme permet de visualiser le mouvement du pseudo-spin effectif associé à notre système dans la sphère de Bloch. Cela permet d'avoir une vision intuitive de ce qui se passe. Toutefois, cette approche n'est valable que pour des temps de capture *courts* devant le temps de précession de spin dans la boîte, autour du champ effectif total $\vec{\Omega}$ (contrairement à l'approche que nous avons choisie dans le paragraphe précédent).

Nous considérons donc par la suite qu'une lumière polarisée σ^- crée un électron de spin initial orienté selon (Oz), sans tenir compte des phénomènes de relaxation qui interviennent lors de la capture de la couche de mouillage vers la boîte. Cela revient à dire que l'on crée une superposition cohérente d'états : l'élargissement spectral des niveaux d'énergie qui vaut $\frac{\hbar}{\tau_{capt}}$ est suffisant pour exciter les deux états propres de l'exciton séparés de δ_1 .

Nous allons à présent exprimer les taux de polarisation linéaire et circulaire de la luminescence en fonction du spin moyen.

Grâce à l'équation 3.54, le taux de polarisation circulaire de la luminescence s'écrit simplement de la façon suivante :

$$P_{circ} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{\rho_{00} - \rho_{11}}{\rho_{11} + \rho_{00}} = 2\langle S_z \rangle \quad (3.55)$$

Quant au taux de polarisation linéaire de la luminescence, il s'obtient en écrivant la matrice densité dans la base des états $\{|X\rangle, |Y\rangle\}$:

$$P_{lin} = \frac{I^x - I^y}{I^x + I^y} = \rho_{01} + \rho_{10} = 2\langle S_x \rangle \quad (3.56)$$

Remarque Les expressions 3.55 et 3.56 permettent de retrouver les expressions de la polarisation circulaire et de la polarisation linéaire de luminescence établies précédemment en fonction des paramètres α et β . Il faut pour cela utiliser l'équation 3.54 et écrire la matrice densité associée au mélange statistique des états $|\phi_+\rangle$ et $|\phi_-\rangle$ définis précédemment dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle\}$:

$$\rho = \begin{pmatrix} \left(\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 & \left(\frac{\alpha^2-\beta^2}{2} \cdot \left(\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 - \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \right) \right) \\ \left(\frac{\alpha^2-\beta^2}{2} \cdot \left(\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 - \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \right) & \left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \cdot \left(\frac{\alpha-\beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \end{pmatrix}$$

Dans les conditions expérimentales que nous venons de décrire, les excitons sont photogénérés par une impulsion polarisée circulairement. Dans le formalisme adopté ici, ils seront caractérisés par un pseudo-spin initial orienté selon (Oz), que nous noterons $\langle \vec{S}_Z^0 \rangle \equiv \vec{S}_Z^0$ ⁷. Les états propres de l'exciton neutre $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ polarisés linéairement selon $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ sont quant à eux décrits par un pseudo-spin orienté selon l'axe (Ox).

7. Par souci de simplification, la notation bra-ket est omise par la suite.

En présence d'un champ magnétique effectif $\vec{\Omega}$ tel que $\vec{\Omega} (\Omega_x, 0, \Omega_z)$, le pseudo-spin $\vec{S}(t)$ va effectuer une précession de Larmor autour de ce champ à la vitesse angulaire $\sqrt{\Omega_x^2 + \Omega_z^2}$, comme le montre la Figure 3.15.

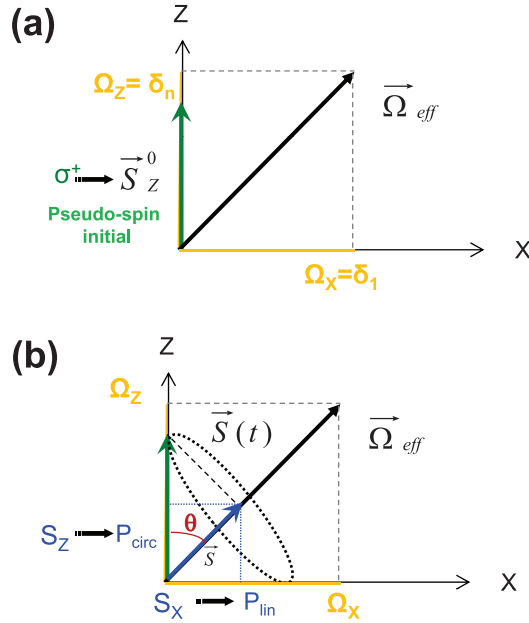


FIGURE 3.15 – Schéma de principe de la dynamique de spin de l'exciton en présence d'un champ magnétique effectif de coordonnées $(\Omega_x, 0, \Omega_z)$ dans le formalisme de pseudo-spin effectif après une excitation polarisée σ^+ .

Dans la mesure où le temps de vie radiatif ($\tau_{rad}=800\text{ps}$ pour nos boîtes quantiques) est long devant le temps de précession autour de $\vec{\Omega}$ ⁸, le pseudo-spin moyenné au cours du temps (que nous noterons $\langle \vec{S} \rangle_t$) est déterminé par la projection de $\vec{S}_Z^0$ sur la direction définie par le champ effectif, soit :

$$\langle \vec{S} \rangle_t = \frac{(\vec{S}_Z^0 \cdot \vec{\Omega}) \vec{\Omega}}{\|\vec{\Omega}\|^2} \quad (3.57)$$

Pour un état de spin donné, l'interaction d'échange anisotrope de l'exciton neutre δ_1 peut être vue comme un champ magnétique effectif orienté selon (Ox) et de norme $\Omega_x = \frac{\delta_1}{\hbar}$. L'exciton neutre est également sensible au champ nucléaire effectif

8. Dans notre expérience, $\Delta E = \sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2} = 15 \mu\text{eV}$, ce qui donne un temps de précession τ_p de 275 ps.

créé par le trion, orienté selon (Oz), et de norme $\Omega_z = \frac{\delta_n}{\hbar}$, où δ_n désigne le déplacement Overhauser. Le champ effectif autour duquel le pseudo-spin précesse s'écrit donc :

$$\vec{\Omega} = \left(\frac{\delta_1}{\hbar}, 0, \frac{\delta_n}{\hbar} \right) \quad (3.58)$$

On peut alors calculer le pseudo-spin moyen grâce à l'équation 3.57 :

$$\langle \vec{S} \rangle_t = \frac{(\vec{S}_Z^0 \cdot \vec{\Omega}) \vec{\Omega}}{\|\vec{\Omega}\|^2} = |\vec{S}_Z^0| \cdot \cos \theta \frac{\vec{\Omega}}{\|\vec{\Omega}\|} = S_Z^0 \frac{\delta_n}{\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2}} \frac{\vec{\Omega}}{\|\vec{\Omega}\|} \quad (3.59)$$

Le taux de polarisation linéaire moyen de la luminescence s'obtient finalement en projetant le pseudo-spin moyen sur l'axe (Ox) :

$$P_{lin} = 2 \cdot \langle S_x \rangle_t = 2 \cdot \langle \vec{S} \rangle_t \cdot \vec{e}_x = 2 \cdot |\langle S \rangle|_t \sin \theta = 2 \cdot |\langle S \rangle|_t \frac{\delta_1}{\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2}} \quad (3.60)$$

En fonction du pseudo-spin initial S_Z^0 , cela donne :

$$P_{lin} = 2 \cdot S_Z^0 \cos \theta \cdot \sin \theta = 2 \cdot S_Z^0 \cdot \frac{\delta_1 \delta_n}{\delta_1^2 + \delta_n^2} \quad (3.61)$$

Le taux de polarisation linéaire de la luminescence vaut donc :

$$P_{lin} = P_{circ}^0 \cdot \frac{\delta_1 \delta_n}{\delta_1^2 + \delta_n^2} \text{ avec } P_{circ}^0 = 2 \cdot S_Z^0 \quad (3.62)$$

De façon similaire, on peut évaluer le taux de polarisation circulaire moyen de la luminescence en projetant le pseudo-spin moyen selon (Oz) :

$$P_{circ} = 2 \cdot \langle S_z \rangle_t = 2 \cdot \langle \vec{S} \rangle_t \cdot \vec{e}_z = 2 \cdot |\langle S \rangle|_t \cos \theta = 2 \cdot |\langle S \rangle|_t \frac{\delta_n}{\sqrt{\delta_n^2 + \delta_1^2}} \quad (3.63)$$

Ce qui donne :

$$P_{circ} = 2 \cdot S_Z^0 \cos \theta \cdot \cos \theta = 2 \cdot S_Z^0 \cdot \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2 + \delta_n^2} \quad (3.64)$$

Le taux de polarisation circulaire de la luminescence vaut donc :

$$P_{circ} = P_{circ}^0 \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2 + \delta_n^2} \text{ avec } P_{circ}^0 = 2.S_Z^0 \quad (3.65)$$

Lorsque le champ nucléaire devient grand devant l'énergie d'échange anisotrope, seule une polarisation circulaire est mesurée. A l'inverse, en l'absence de champ nucléaire, on retrouve les états propres "classiques" de l'exciton, et on ne mesure ni polarisation linéaire ni polarisation circulaire. C'est bien ce que l'on constate expérimentalement sur la Figure 3.14 qui présente le cas d'un exciton avec $\delta_1 \gg \delta_n$.

La légère baisse de polarisation linéaire observée pour des puissances d'excitation élevées peut également s'expliquer : le champ nucléaire effectif devient plus grand que l'énergie d'échange anisotrope, et la projection du pseudo-spin effectif sur l'axe (Ox), qui caractérise le taux de polarisation linéaire de la luminescence, décroît.

A partir de nos données expérimentales, nous pouvons également tracer les taux de polarisation linéaire et circulaire de la luminescence de l'exciton neutre en fonction du champ nucléaire effectif créé au sein de la boîte B_N . Celui-ci est proportionnel au déplacement Overhauser δ_n . Pour le calculer, nous prenons $g_e = -0.48$ [86] pour le facteur de Landé de l'électron. Le résultat obtenu est présenté sur la Figure 3.16.

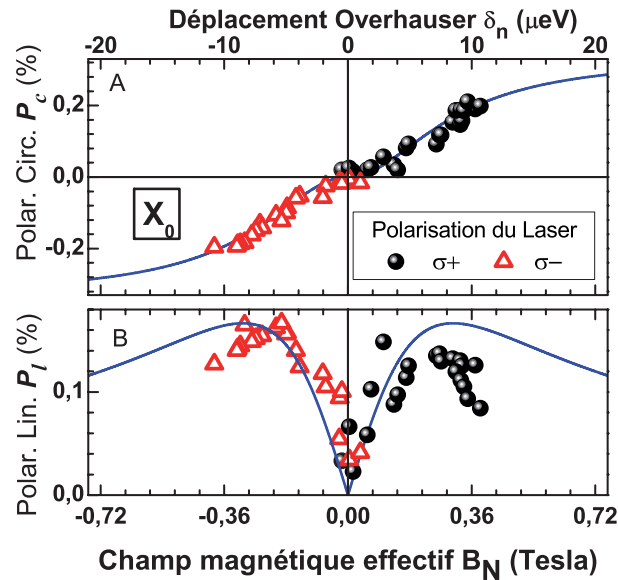


FIGURE 3.16 – (a) Taux de polarisation circulaire et (b) Taux de polarisation linéaire de l'exciton neutre en fonction du champ nucléaire effectif B_N pour un laser polarisé circulairement σ^+ et σ^- .

Ces courbes expérimentales sont ajustées avec succès à partir des équations établies précédemment 3.62 et 3.65 en prenant pour seul paramètre de fit $P_c^0=33\%$.

La Figure 3.16 montre que la polarisation linéaire de la luminescence de l'exciton neutre peut être ajustée en modifiant le champ nucléaire présent au sein de la boîte, via la puissance ou l'état de polarisation du laser d'excitation. Les taux de polarisation linéaire et circulaire de la luminescence pour la boîte quantique étudiée vont respectivement de 0 à 11% et de 0 à 22%.

On peut remarquer que le taux de polarisation linéaire de la luminescence ne peut pas dépasser $\frac{P_{circ}^0}{2}$, valeur qui est atteinte lorsque $\delta_1=\delta_n$. Cela correspond à la situation où le pseudo-spin effectif de l'exciton représenté sur la Figure 3.15 est orienté à 45° dans le plan (OXZ).

Conclusion L'intérêt de l'approche adoptée ici par rapport à la précédente est de donner une vision "dynamique" de la sphère de Bloch : on ne considère plus les états propres stationnaires, alignés sur le champ magnétique effectif.

Les deux formalismes théoriques que nous venons de présenter ne prennent pas les mêmes hypothèses de départ mais aboutissent au même résultat. Nous avons considéré deux régimes, l'un où le temps de capture était court et l'autre long devant le temps de précession du pseudo-spin de l'exciton. Le fait d'obtenir des résultats identiques dans les deux cas provient du fait que, dans l'approche *dynamique* que nous venons de présenter :

- On crée une superposition cohérente d'états.
- Le temps de précession du pseudo-spin des excitons brillants est court devant le temps de vie. Le spin moyenné au cours du temps est donc identique à celui calculé dans la limite du temps de capture long.

Le temps de capture ayant été mesuré à 30ps dans les puits quantiques d'*InAs/GaAs* [39] aux températures cryogéniques habituelles, il est probable que l'approche dynamique corresponde mieux à nos conditions expérimentales. Toutefois, cela n'a pas d'importance car le résultat obtenu est *indépendant du temps de capture considéré*.

3.3.3 Le bi-exciton

Nous avons mesuré les taux de polarisation circulaire et linéaire de la luminescence du bi-exciton en fonction de l'énergie du laser d'excitation, comme cela est présenté sur la Figure 3.17 :

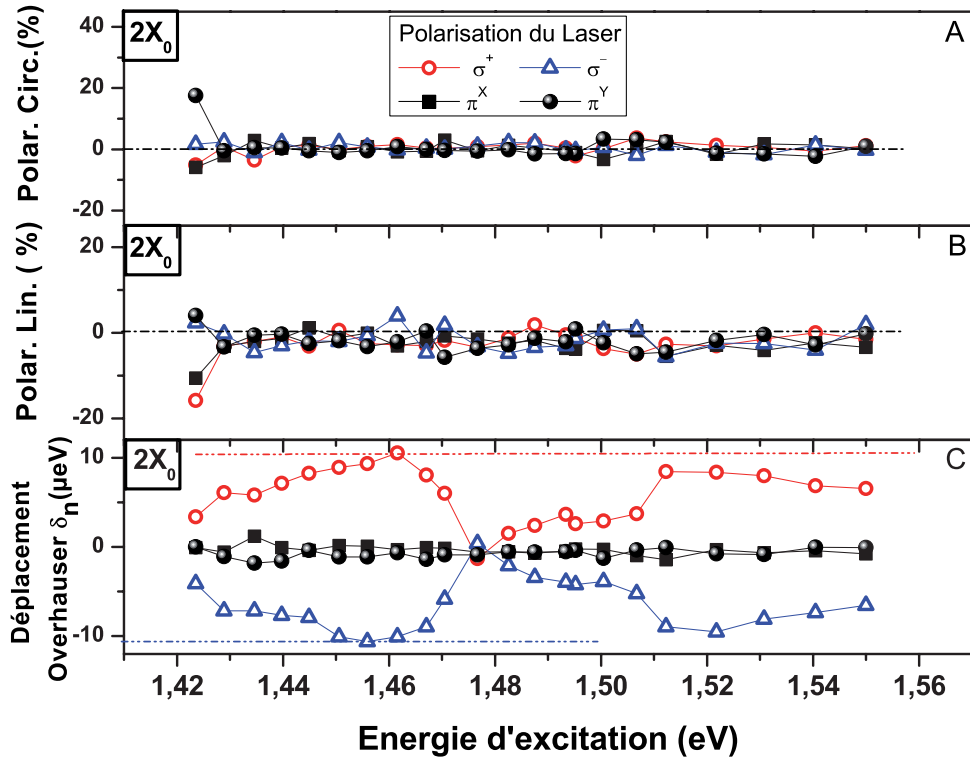


FIGURE 3.17 – Spectres d'excitation du déplacement Overhauser δ_n et des taux de polarisation circulaire et linéaire du bi-exciton $2X_0$. Différents états de polarisation du laser sont étudiés. Nous détectons à l'énergie de la transition $E_{2X_0}=1.3563$ eV.

Sur le bi-exciton, on mesure toujours un déplacement Overhauser, mais ni polarisation linéaire ni polarisation circulaire de luminescence quelle que soit l'énergie d'excitation du laser.

De plus, lorsque le laser est polarisé circulairement, le déplacement Overhauser augmente avec la puissance d'excitation :

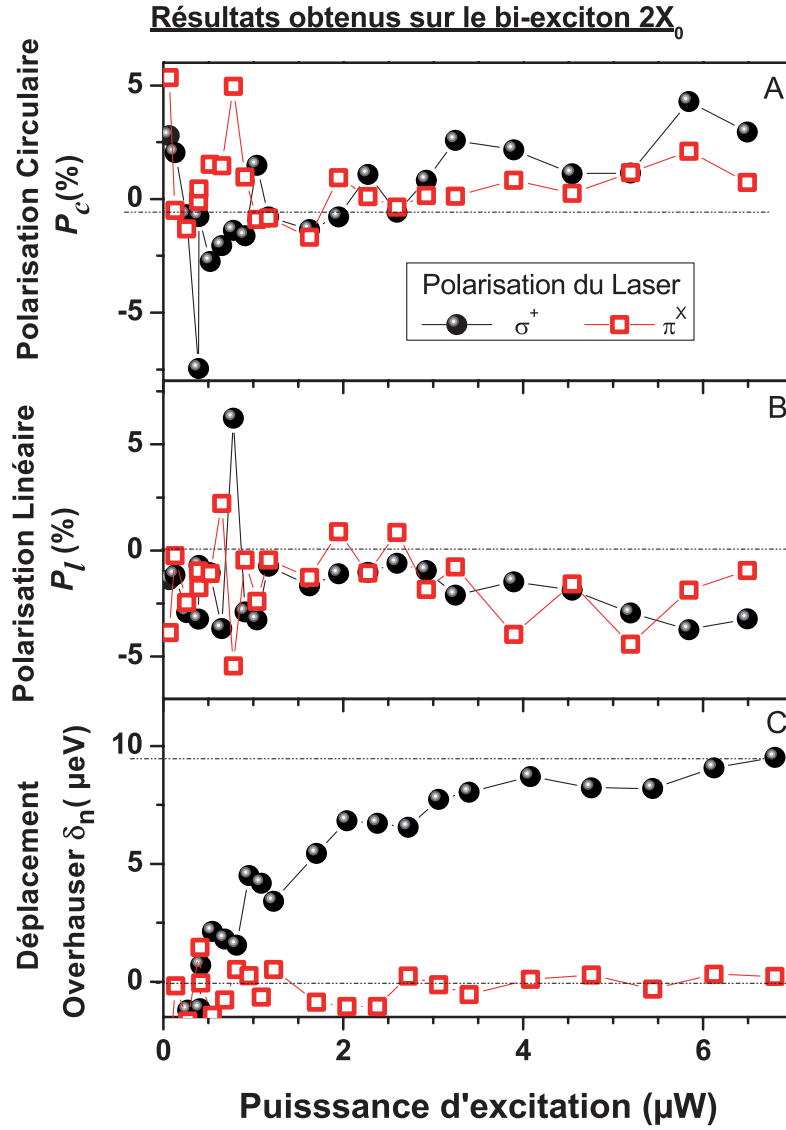


FIGURE 3.18 – Influence de la puissance d'excitation sur les taux de polarisation circulaire et linéaire et du déplacement Overhauser à une énergie $E_{Laser}=1.44$ eV. On constate l'augmentation du déplacement Overhauser avec la puissance d'excitation lorsque le laser est polarisé circulairement jusqu'à environ $10\mu\text{eV}$ comme pour l'exciton neutre et le trion.

Le cas du bi-exciton diffère de celui de l'exciton. Dans son état fondamental, il est constitué de deux paires électron-trou, qui forment deux singulets de spin. Il n'est donc pas sensible au champ nucléaire effectif qui apparaît dans la boîte. Ses états propres ne seront donc pas modifiés. L'intensité de luminescence du bi-exciton intégrée spectralement est identique selon que l'on détecte avec une polarisation $\sigma^+(\pi^X)$ ou $\sigma^-(\pi^Y)$. Elle vaut :

$$I_{\pm} = \left(\frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha - \beta}{\sqrt{2}} \right)^2 \quad (3.66)$$

On ne mesure donc ni polarisation circulaire, ni polarisation linéaire de luminescence.

Par contre, l'état final de la transition radiative $2X_0 \rightarrow X_0$ est l'*exciton neutre*, dont les états propres sont modifiés par le champ nucléaire. La cascade radiative correspondante est représentée sur la Figure 3.19 :

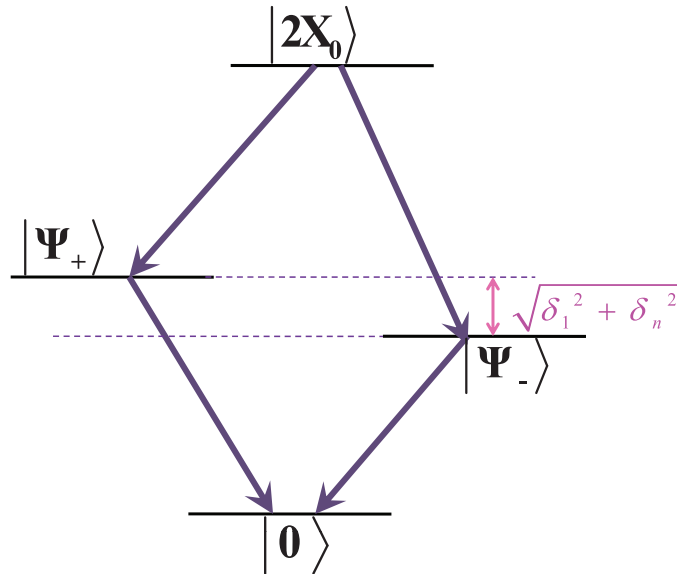


FIGURE 3.19 – Schéma des nouveaux états d'énergie du bi-exciton après modification des états propres de l'exciton neutre sous excitation polarisée circulairement

Quand on génère l'exciton $|X_0\rangle$ depuis l'état $|2X_0\rangle$ du bi-exciton, comme le temps de désexcitation radiative de l'état de bi-exciton vers l'état d'exciton est compris entre 500ps et 1ns, on ne crée pas de superposition cohérente des états $|\Psi_+\rangle$ et $|\Psi_-\rangle$. C'est un processus lent, qui conduit forcément à des états stationnaires. L'approche

dynamique décrite précédemment n'est donc pas valable : il faut utiliser l'approche stationnaire.

Sous fort champ magnétique, la circularisation totale des états de l'exciton produit sur le bi-exciton la cascade d'émission radiative σ^+/σ^- ou σ^-/σ^+ [115]. Par conséquent, on n'observe plus de structure miroir, comme en l'absence de champ magnétique : les doublets se correspondent simplement par translation. Cela explique que le signe du déplacement Overhauser mesuré sur le bi-exciton soit identique à celui mesuré sur l'exciton.

3.4 Mise en évidence expérimentale de la structure fine des différents complexes excitoniques

La procédure de fit théorique décrite en Annexe B de ce manuscrit est une technique indirecte basée sur le déséquilibre des forces d'oscillateur des transitions détectées en polarisation σ^+ et σ^- . Nous avons utilisé une méthode plus directe, reposant sur une spectroscopie de plus haute résolution, afin de résoudre *expérimentalement* la structure fine du *trion*, de l'*exciton neutre* et du *bi-exciton*.

Pour cela, nous avons utilisé l'interféromètre de Fabry-Pérot présenté dans le chapitre 2 en l'insérant sur la voie de détection de notre montage. La résolution spectrale atteinte est d'environ $5\mu\text{eV}$. Nous "visualisons" ainsi de façon directe la modification des états propres de l'exciton neutre induite par le champ nucléaire effectif présent dans la boîte.

3.4.1 Le cas du trion

la Figure 3.20 présente la structure fine du trion en l'absence de champ magnétique externe, pour deux états de polarisation du laser d'excitation (*linéaire* et *circulaire*). La luminescence est détectée avec une polarisation circulaire σ^+ et σ^- .

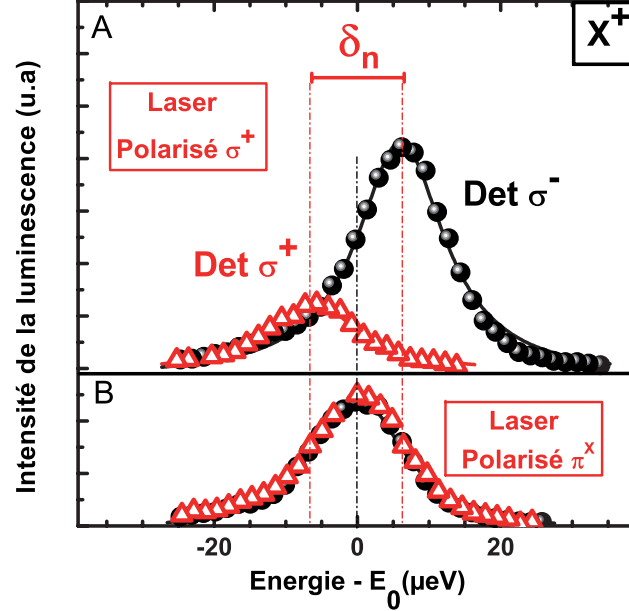


FIGURE 3.20 – Mise en évidence de la structure fine du trion (a) lorsque le laser est polarisé linéairement (b) lorsque le laser est polarisé circulairement

Un comportement différent est observé suivant la polarisation du laser d'excitation :

- Lorsque le laser est polarisé linéairement, les deux raies détectées en polarisation circulaire σ^+ et σ^- ne sont pas séparées énergétiquement, et elles ont la même intensité (Figure 3.20(b)). Le taux de polarisation circulaire de la luminescence est donc nul : il n'y a pas d'orientation optique de l'électron non apparié sous excitation linéaire.
- En revanche, lorsque le laser est polarisé circulairement, les deux raies détectées en polarisation circulaire σ^+ et σ^- n'ont plus la même intensité (Figure 3.20(a)). Cette fois-ci, on mesure une polarisation circulaire de la luminescence du trion. Il y a donc une orientation optique de l'électron non apparié sous excitation circulaire.

De plus, les deux composantes en détection σ^+ et σ^- sont maintenant séparées énergétiquement, ce qui traduit la présence d'un champ nucléaire effectif au

sein de la boîte. Ce décalage énergétique est celui que l'on aurait sous l'action d'un champ magnétique $\vec{B}=\vec{B}_N$: il s'agit du déplacement Overhauser δ_n , qui est une sonde directe des effets nucléaires.

Nous avons ensuite modifié continûment la polarisation du laser d'excitation, partant d'une polarisation linéaire pour aller vers une polarisation circulaire à l'aide de la lame à retard de phase variable présente sur la voie d'excitation du microscope. On observe de cette façon la construction de la polarisation nucléaire. Petit à petit, les deux raies détectées en polarisation σ^+ et σ^- se séparent en énergie et leur intensité relative est modifiée. Le champ Knight augmente avec la polarisation de spin $\langle S \rangle$, et le champ nucléaire B_N créé au sein de la boîte également. C'est ce qui est présenté sur la Figure 3.21.

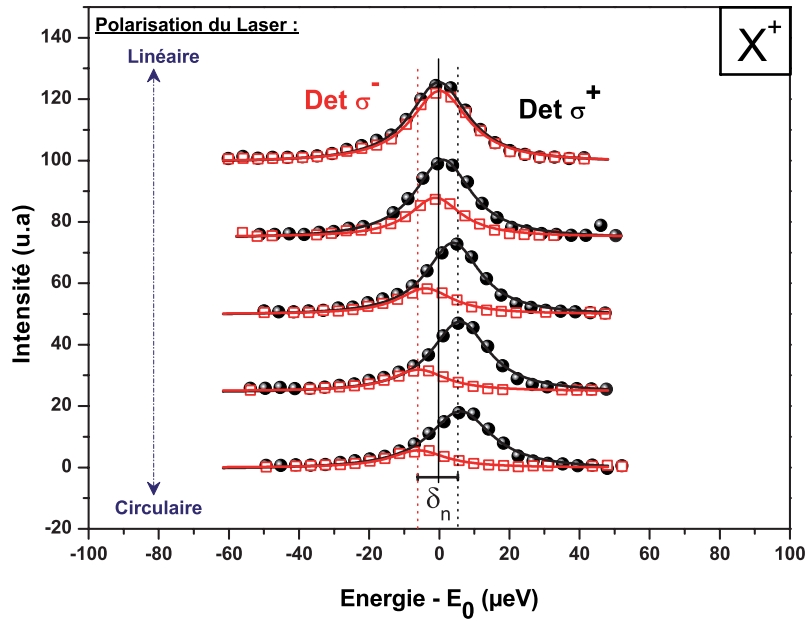


FIGURE 3.21 – Evolution de la structure fine du trion en fonction de la polarisation du laser d'excitation

3.4.2 Le cas de l'exciton neutre

Nous avons également mis en évidence la structure fine de l'exciton neutre pour deux états de polarisation du laser d'excitation (*linéaire* et *circulaire*), comme cela est présenté sur la Figure 3.22. On détecte à chaque fois la lumière polarisée linéairement π^x et π^y .

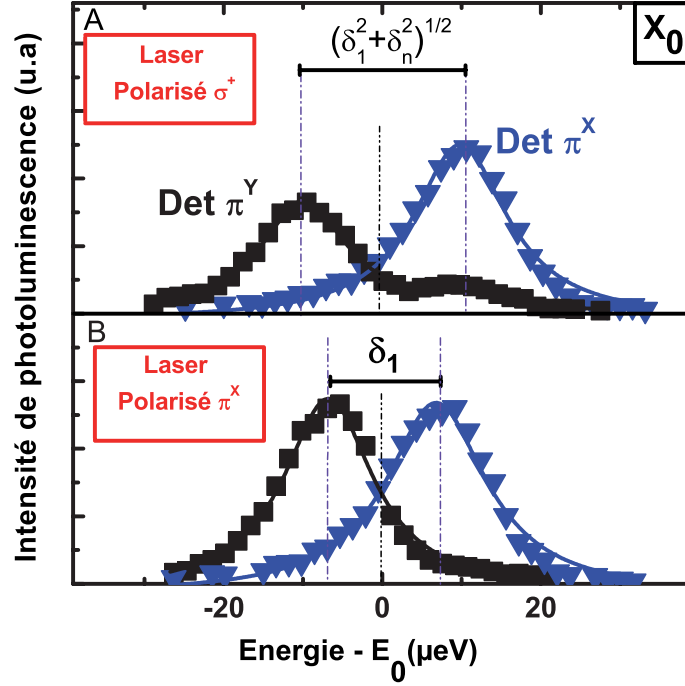


FIGURE 3.22 – Mise en évidence de la structure fine de l'exciton neutre (a) lorsque le laser est polarisé linéairement (b) lorsque le laser est polarisé circulairement

Comme attendu, la polarisation du laser d'excitation joue un rôle dans la structure fine de l'exciton neutre :

- Une excitation polarisée linéairement permet d'observer la structure fine "classique" de l'exciton neutre. Les états propres de l'exciton neutre $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont polarisés linéairement selon les directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. Les deux raies détectées en polarisation linéaire π^x et π^y sont séparées de l'énergie d'échange anisotrope δ_1 , comme cela est présenté sur la Figure 3.22(b). De plus, elles ont la même intensité : on ne mesure ni polarisation linéaire, ni polarisation circulaire sur l'exciton neutre, comme attendu.
- Une excitation polarisée circulairement conduit à des observations différentes. Les deux raies détectées en polarisation linéaire π^x et π^y sont à présent séparées de $\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2}$, comme le montre la Figure 3.22(a). De plus, l'apparition d'une double lorentzienne sur chaque spectre montre que les états propres de l'exciton sont modifiés. Leur intensité relative diffère, ce qui conduit à la mesure d'une polarisation linéaire de luminescence.

De la même façon que précédemment, on modifie continûment la polarisation du laser d'excitation, en partant d'une polarisation linéaire pour aller vers une polarisation circulaire à l'aide de la lame à retard de phase variable de la voie d'excitation du microscope. On observe alors la modification progressive des états propres de l'exciton neutre, comme le présente la Figure 3.23 :

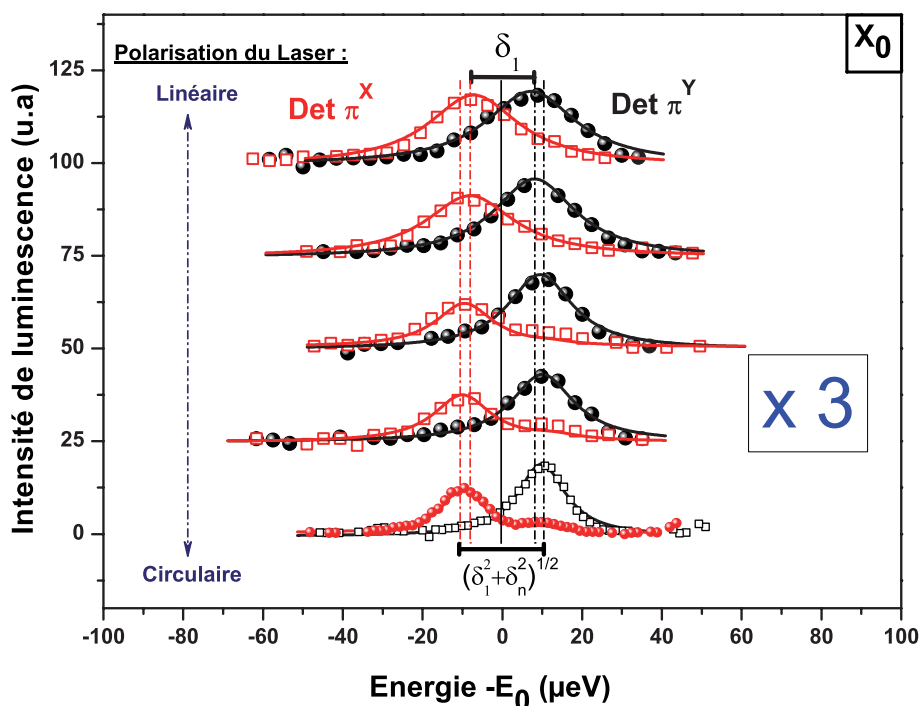


FIGURE 3.23 – Evolution de la structure fine de l'exciton neutre en fonction de la polarisation du laser d'excitation

Les deux lorentziennes simples, caractéristiques des deux états propres polarisés linéairement de l'exciton neutre, se séparent pour former deux doubles lorentziennes, dont l'intensité totale relative est différente. Elles caractérisent les nouveaux états propres elliptiques de l'exciton neutre.

3.4.3 Le cas du bi-exciton

Enfin, nous avons modifié continûment l'état de polarisation du laser d'excitation passant d'une polarisation linéaire à une polarisation circulaire, et observé la structure fine du bi-exciton $2X_0$, en détectant à chaque fois la lumière polarisée linéairement π^x et π^y . Nous présentons ces résultats sur la Figure 3.24 :

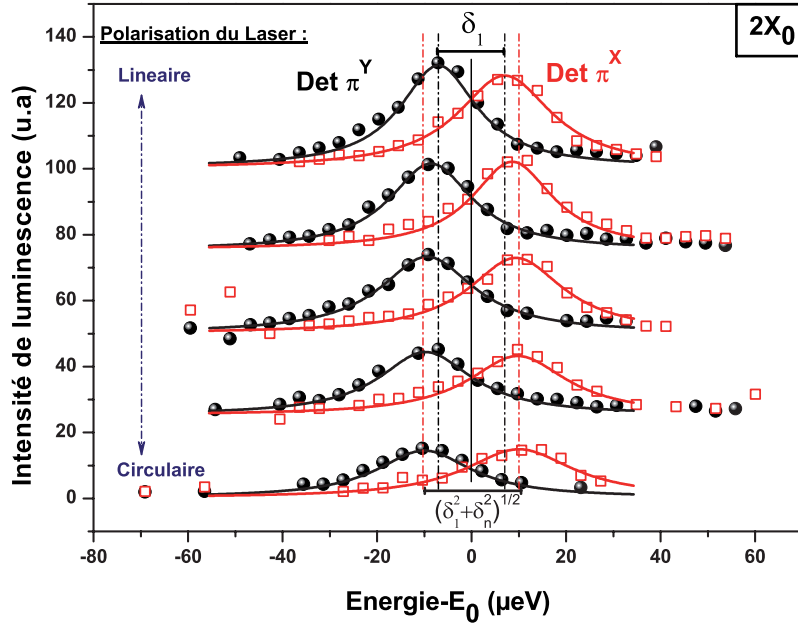


FIGURE 3.24 – Evolution de la structure fine du trion en fonction de la polarisation du laser d'excitation

Lorsque le laser est polarisé linéairement, on observe la structure fine "classique" du bi-exciton. Comme prévu, les composantes détectées en polarisation linéaire π^x et π^y sont renversées en énergie par rapport à l'exciton X_0 . Lorsque l'on modifie la polarisation du laser, les deux états propres se séparent en énergie passant d'un écart qui vaut δ_1 à un écart de $\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2}$ pour une excitation polarisée circulairement.

On constate un élargissement des raies plus important sur le bi-exciton ($\Delta E = \sim 25 \mu\text{eV}$) que sur l'exciton ($\Delta E = \sim 15 \mu\text{eV}$). Cela pourrait expliquer que la modification de la forme lorentzienne des raies de luminescence sous excitation polarisée circulairement n'est pas visible pour le bi-exciton. On peut toutefois remarquer que l'intensité relative des deux transitions détectées en polarisation π^x et π^y est identique : ainsi, la polarisation linéaire de luminescence est nulle.

Conclusion

Nous avons mis en évidence un effet intéressant de conversion linéaire-circulaire des états propres de l'exciton neutre par la lumière en l'absence de champ magnétique externe. Un champ magnétique nucléaire effectif est créé au sein de la boîte lorsque celle-ci est excitée de façon non résonante, à une énergie proche du gap de la couche de mouillage. Cette conversion linéaire-circulaire des états propres est "ajustable" grâce à la puissance et l'état de polarisation du laser d'excitation.

L'observation de ce phénomène très particulier n'est rendu possible que par la conjonction de trois éléments :

- i L'énergie d'échange anisotrope δ_1 est comparable au déplacement Overhauser δ_n pour la boîte quantique étudiée .
- ii La présence fluctuante au cours du temps d'un trou dans la boîte (avec un temps de corrélation pour ces fluctuations de l'ordre de 10 ns), qui est un phénomène classiquement observé dans les échantillons dopés chimiquement [99, 100, 101, 101, 104, 103, 102], est ici mise à profit. Elle permet en particulier la construction d'un champ nucléaire effectif par l'intermédiaire du trion, qui est *ressenti* par l'exciton.
- iii Le spin de l'électron doit rester stable lors de la capture de la couche de mouillage vers la boîte quantique, et à l'échelle du temps de vie radiatif de l'exciton dans la boîte.

Chapitre 4

Manipulations cohérentes sur boîte quantique unique : Mise en évidence des oscillations de Rabi et Passage adiabatique

Sommaire

4.1	Etude théorique du passage adiabatique rapide et des oscillations de Rabi	162
4.1.1	Etat de l'art	162
4.1.2	Etude théorique	164
4.2	Mise en oeuvre expérimentale	179
4.2.1	Les outils expérimentaux	180
4.2.2	Limites expérimentales et modélisation	189
4.3	Résultats expérimentaux : des oscillations de Rabi au passage adiabatique rapide	201
4.3.1	Protocole expérimental	201
4.3.2	Présentation des résultats expérimentaux	204
4.3.3	Interprétations à l'aide des simulations numériques	208
4.4	Conclusion et perspectives	214

Nous présentons dans ce chapitre des expériences réalisées en régime cohérent, c'est-à-dire avec des impulsions plus courtes que le temps de déphasage du système, sous excitation résonante.

Ce chapitre débute par un bref état de l'art des oscillations de Rabi et du passage adiabatique rapide dans le domaine de la physique atomique et de la matière condensée, ce qui permettra de positionner ce travail. Nous présentons ensuite une étude théorique simple des oscillations de Rabi et du passage adiabatique rapide dans un système à deux niveaux.

Nous décrivons dans une seconde partie les différents choix et développements techniques qui ont été réalisés afin d'observer expérimentalement les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique rapide de l'exciton neutre dans une boîte quantique unique. Nous discutons également des limites expérimentales de notre dispositif.

Enfin, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus, que nous cherchons à interpréter à l'aide de simulations numériques.

4.1 Etude théorique du passage adiabatique rapide et des oscillations de Rabi

4.1.1 Etat de l'art

Lorsqu'un système atomique à deux niveaux est soumis à un fort rayonnement lumineux, les populations électroniques oscillent entre l'état fondamental et l'état excité avec la pulsation de Rabi $\Omega(t)$, qui est proportionnelle au moment dipolaire μ et à l'amplitude du champ électrique de l'onde lumineuse $\mathcal{A}(t)$ [116]. Elle s'écrit :

$$\Omega(t) = \mu \frac{\mathcal{A}(t)}{\hbar} \quad (4.1)$$

Le formalisme décrivant l'évolution d'un tel système fut introduit par Rabi en 1937 pour rendre compte de l'interaction entre un moment magnétique et un champ magnétique tournant [117]. La réalisation expérimentale (toujours par Rabi) date de 1939 [118]. Un jet moléculaire de spin bien déterminé passe dans un champ magnétique tournant, dont on fait varier la fréquence de rotation. Lorsque la fréquence de rotation du champ entre en résonance avec la fréquence de Larmor du moment magnétique des atomes, ce dernier se met à précesser : on détecte alors le changement de spin avec un appareil de Stern et Gerlach. La fréquence du champ magnétique mesurée est proportionnelle au moment magnétique des atomes. Le principe de cette expérience est à l'origine de la R.M.N [82].

Les progrès de la technologie et l'engouement des expérimentateurs pour le contrôle cohérent ont permis d'obtenir des résultats spectaculaires dans le domaine de la physique atomique et moléculaire. Dans ces systèmes, les interactions entre les différents systèmes microscopiques sont beaucoup plus faibles qu'en phase liquide ou solide. Les temps de déphasage sont plus longs, rendant les expériences plus réalisables.

Les temps de cohérence extrêmement courts (de l'ordre de quelques picosecondes à 10K) rendent ce type de manipulations très délicates en physique du solide. Pour accéder au régime cohérent, il faut exciter le système avec des impulsions ultra-courtes. Des oscillations de Rabi sont observées pour la première fois en 1994, de manière indirecte, en mesurant le profil temporel d'une impulsion après sa propagation à travers des puits quantiques [119]. Il faut attendre 1999 pour une observation plus directe [120]. Des résultats probants ont ensuite été obtenus dans des disques

quantiques [121], ou pour des excitons de puits quantiques faiblement localisés dans des fluctuations de potentiel dues aux rugosités d'interface (boîtes quantiques à fluctuations d'interface) [1].

Par la suite, des oscillations de Rabi sont observées dans des boîtes quantiques contrôlées par des électrodes, où le signal est détecté électriquement en photocourant [68, 122, 123], ou encore par des techniques de type pompe-sonde sur un état excité [124]. L'originalité des boîtes quantiques auto-organisées réside dans la forte localisation et l'éloignement spectral des états étendus de la barrière et de la couche de mouillage. Les mécanismes de décohérence y sont relativement inefficaces, conduisant à des temps de déphasage longs, de l'ordre de 400ps [9]. Les conditions pour l'observation des effets résultant de l'interaction cohérente du champ électromagnétique avec le système (i.e $T_2 > \tau_0$, durée de l'impulsion d'excitation) sont donc favorables.

Dans le domaine spectral, le couplage fort lumière-matière, qui est responsable de l'apparition des oscillations de Rabi dans le domaine temporel, conduit à l'observation du triplet de fluorescence de Mollow [72].

Les oscillations de Rabi permettent en principe de préparer un état quantique avec une grande fidélité. C'est un bel exemple de contrôle cohérent, où le champ électrique de l'impulsion laser est utilisé pour manipuler directement l'état quantique du système de façon à le conduire vers l'état final désiré.

En pratique, la préparation d'un état quantique à l'aide des oscillations de Rabi présente certaines limites. En particulier, l'inversion de population n'est pas obtenue de façon robuste :

- Dans les expériences sur boîte quantique unique, compte tenu de la précision requise sur la taille et la position du spot d'excitation, des fluctuations de puissance peuvent intervenir, avec des conséquences importantes sur la population de l'état excité.
- Les oscillations de Rabi sont très difficiles à voir sur un ensemble de boîtes. En effet, chaque boîte porte un moment dipolaire différent, et produit de ce fait son propre système d'oscillations. En particulier, la puissance de l'impulsion

laser requise pour générer une impulsion π est différente pour chaque boîte : il est donc impossible de préparer un état quantique avec une fidélité de 100% pour l'ensemble des boîtes du système.

Dans la suite de ce chapitre, nous montrons qu'il est possible de préparer un état quantique de façon *robuste* en excitant le système à deux niveaux avec des impulsions à dérive de fréquence. On réalise de cette façon un passage adiabatique rapide, et, à partir d'une certaine puissance, l'inversion de population est toujours totale.

Comme pour les oscillations de Rabi, le passage adiabatique a été mis en évidence à l'origine dans des expériences décrivant l'interaction entre un champ magnétique et un moment magnétique. Cette technique est utilisée par exemple avec les spins des noyaux pour l'imagerie par résonance magnétique nucléaire [125]. Ensuite, il faut attendre l'invention du laser pour voir apparaître des expériences de passage adiabatique rapide en optique, où il s'agit cette fois de coupler un champ électrique et un dipôle électrique. Cette technique est bien connue dans les atomes [126, 127, 116]. Dans ce domaine, un état de l'art complet est proposé dans la thèse de C.Ventalon [128].

En revanche, le passage adiabatique sur un système en phase condensée n'avait encore jamais été réalisé. C'est dans ce cadre que se situe ce travail : nous mettons en évidence expérimentalement les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique rapide de l'exciton dans une boîte quantique unique.

4.1.2 Etude théorique

Nous nous intéressons dans cette partie à l'interaction entre un système à deux niveaux et une impulsion lumineuse, dans le régime cohérent. Le système à deux niveaux étudié dans notre expérience se compose du niveau fondamental de la boîte quantique noté $|0\rangle$ et de l'état d'exciton, noté $|X_0\rangle$, constitué d'une paire électron/trou en interaction coulombienne.

Le champ électrique complexe de l'impulsion excitatrice s'écrit de façon générale :

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{A}(t)e^{-i\omega_p t} \quad (4.2)$$

$\mathcal{A}(t)$ est l'enveloppe complexe du champ, et ω_p est sa fréquence centrale.

L'évolution du système à deux niveaux, isolé de son environnement, est régie par l'équation :

$$\boxed{i\hbar \frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [\mathcal{H}(t), \rho(t)]} \quad (4.3)$$

$\rho(t)$ est l'opérateur densité qui s'écrit à partir des vecteurs d'état $|\psi(t)\rangle$:

$$\rho(t) = |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)| \quad (4.4)$$

Et $\mathcal{H}(t)$ est l'hamiltonien du système, en interaction avec le champ électromagnétique [116].

Pour écrire cet hamiltonien, nous faisons l'approximation dipolaire électrique : nous négligeons l'effet du champ magnétique de l'impulsion laser, et nous supposons que le champ électrique est uniforme spatialement sur la boîte quantique. Cela revient à considérer que la longueur d'onde de travail est très grande devant les dimensions du système, ce qui est une bonne approximation dans notre système ($l_{BQ} \sim 20nm \ll \lambda$).

On choisit l'état fondamental du système à deux niveaux comme origine des énergies. L'hamiltonien dans la base des états $\{|0\rangle, |X_0\rangle\}$ s'écrit sous la forme d'un terme de couplage $\mathcal{W}(t)$ (termes non diagonaux) et d'un terme non perturbé $\mathcal{H}_0$ indépendant du temps (termes diagonaux) :

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 0 & -\mu \cdot E(t) \\ -\mu \cdot E(t) & \hbar\omega_{01} \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

où $\hbar\omega_{01}$ est l'énergie de transition de l'exciton.

μ est le moment dipolaire associé à la transition $|0\rangle \rightarrow |X_0\rangle$. Il vaut de 20 à 30 Debye dans les boîtes quantiques de type InAs/GaAs [129].

Enfin, $E(t)$ est le champ électrique réel de l'impulsion qui s'exprime :

$$E(t) = \frac{1}{2}(\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)) = \frac{1}{2}(\mathcal{A}(t) \cdot e^{i\omega_p t} + \mathcal{A}^*(t) \cdot e^{-i\omega_p t}) \quad (4.6)$$

Nous nous plaçons ensuite dans le référentiel tournant à la fréquence du champ ω_p ,

de façon à adopter *le point de vue de l'interaction* par rapport à $\mathcal{H}(t)$ [116]. Le changement de référentiel se fait à l'aide de l'opérateur unitaire U_p défini par :

$$U_p = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_p t} \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

dont l'adjoint s'écrit :

$$U_p^\dagger = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\omega_p t} \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

Nous cherchons à présent la nouvelle équation d'évolution dans le référentiel tournant.

On peut écrire l'équation de Schrödinger associée à $\mathcal{H}(t)$:

$$i\hbar \frac{d|\psi(t)\rangle}{dt} = \mathcal{H}(t)|\psi(t)\rangle$$

On effectue alors la transformation :

$$|\psi(t)\rangle = U_p(t)|\tilde{\psi}(t)\rangle$$

Ce qui donne :

$$i\hbar U_p(t) \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = \left(\mathcal{H}(t)U_p(t) - i\hbar \frac{dU_p(t)}{dt} \right) |\tilde{\psi}(t)\rangle$$

En multipliant cette dernière expression par $U_p^\dagger$ et en utilisant la relation $U_p^\dagger U_p = 1$, on aboutit à :

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = \tilde{\mathcal{H}}(t)|\tilde{\psi}(t)\rangle \quad (4.9)$$

où $\tilde{\mathcal{H}}(t)$ est l'hamiltonien défini par :

$$\boxed{\tilde{\mathcal{H}}(t) = U_p^\dagger(t)\mathcal{H}(t)U_p(t) - i\hbar U_p^\dagger(t) \frac{dU_p(t)}{dt}} \quad (4.10)$$

Dans le référentiel tournant, les nouveaux vecteurs d'état $|\tilde{\psi}\rangle = U_p^\dagger|\psi\rangle$ vérifient donc l'équation de Schrödinger 4.9 associée à l'hamiltonien $\tilde{\mathcal{H}}$. Le premier terme de cet

hamiltonien traduit le changement de référentiel, tandis que le second est un terme d'entraînement induit par la dépendance en temps de la nouvelle base.

L'opérateur densité $\tilde{\rho}(t)$ dans le référentiel tournant s'écrit :

$$\tilde{\rho}(t) = U_p^\dagger(t) \rho(t) U_p(t) \quad (4.11)$$

En dérivant cette expression, nous obtenons la nouvelle équation d'évolution de l'opérateur $\tilde{\rho}(t)$ dans le référentiel tournant :

$$\boxed{i\hbar \frac{\partial \tilde{\rho}(t)}{\partial t} = [\tilde{\mathcal{H}}(t), \tilde{\rho}(t)]} \quad (4.12)$$

Le calcul de l'hamiltonien $\tilde{\mathcal{H}}(t)$ permet d'aboutir à l'expression suivante :

$$\tilde{\mathcal{H}}(t) = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu}{2}(\mathcal{A}(t)e^{-2i\omega_p t} + \mathcal{A}^*(t)) \\ -\frac{\mu}{2}(\mathcal{A}(t) + \mathcal{A}^*(t)e^{2i\omega_p t}) & \hbar(\omega_{01} - \omega_p) \end{pmatrix} \quad (4.13)$$

Nous faisons ici l'approximation de l'onde tournante (*approximation séculaire*) qui consiste à conserver uniquement les termes qui évoluent lentement dans le temps [116]. Cela revient à considérer que la largeur spectrale de l'impulsion excitatrice est petite devant $2\omega_p$.

On aboutit de cette façon à l'hamiltonien séculaire suivant :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec}(t) = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu}{2}\mathcal{A}^*(t) \\ -\frac{\mu}{2}\mathcal{A}(t) & \hbar(\omega_{01} - \omega_p) \end{pmatrix} \quad (4.14)$$

Celui-ci peut s'exprimer de façon plus concise à l'aide des paramètres $\Omega(t)$ et Δ :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec}(t) = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega^*(t)}{2} \\ \frac{\Omega(t)}{2} & -\Delta \end{pmatrix} \quad (4.15)$$

$\Omega(t)$ est la fréquence de Rabi à résonance du système. Elle vaut :

$$\Omega(t) = \frac{-\mu\mathcal{A}(t)}{\hbar} \quad (4.16)$$

Δ est le désaccord entre la fréquence centrale de l'impulsion d'excitation et la fréquence de la transition ω_{01} :

$$\Delta = \omega_p - \omega_{01} \quad (4.17)$$

Nous nous plaçons tout d'abord dans le cas simple d'une impulsion d'excitation de profil temporel gaussien, limitée par transformée de Fourier, de durée τ_0 (cas des *oscillations de Rabi*), comme définie dans l'Annexe A par l'expression A.17.

L'enveloppe du champ électrique de l'impulsion $\mathcal{A}(t)$ s'écrit donc simplement :

$$\mathcal{A}(t) = E_0 \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_0} \right)^2 \right] \quad (4.18)$$

τ_0 représente la durée totale à mi-hauteur de l'intensité temporelle. Dans ce cas, $\Omega(t)$ est réel, et Δ est indépendant du temps.

On peut alors diagonaliser l'hamiltonien 4.15 afin de trouver les nouvelles énergies propres :

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}(-\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + \Omega(t)^2}) \quad (4.19)$$

Les nouveaux états propres s'écrivent :

$$\begin{cases} |\tilde{\phi}_-\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |\tilde{0}\rangle - \sin \frac{\theta}{2} |\tilde{X}_0\rangle \\ |\tilde{\phi}_+\rangle = \sin \frac{\theta}{2} |\tilde{0}\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |\tilde{X}_0\rangle \end{cases} \quad (4.20)$$

Avec :

$$\begin{cases} \cos \theta = \frac{-\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + \Omega(t)^2}} \\ \sin \theta = \frac{\Omega(t)}{\sqrt{\Delta^2 + \Omega(t)^2}} \end{cases} \quad (4.21)$$

Sur la courbe 4.1 ci-dessous, on a représenté l'évolution de la population de l'état excité en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ (exprimée en unité de π), définie par la relation :

$$\mathcal{S} = \frac{1}{\pi} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega(t) dt \right| \quad (4.22)$$

Nous démontrerons par la suite que la surface $\mathcal{S}$ est proportionnelle à la racine carrée de l'énergie de l'impulsion d'excitation, et qu'elle est indépendante de la dérive de fréquence de l'impulsion.

La courbe 4.1 montre que les populations oscillent entre l'état fondamental et l'état excité en fonction de la puissance d'excitation. Pour certaines valeurs de puissance, l'inversion de population est totale.

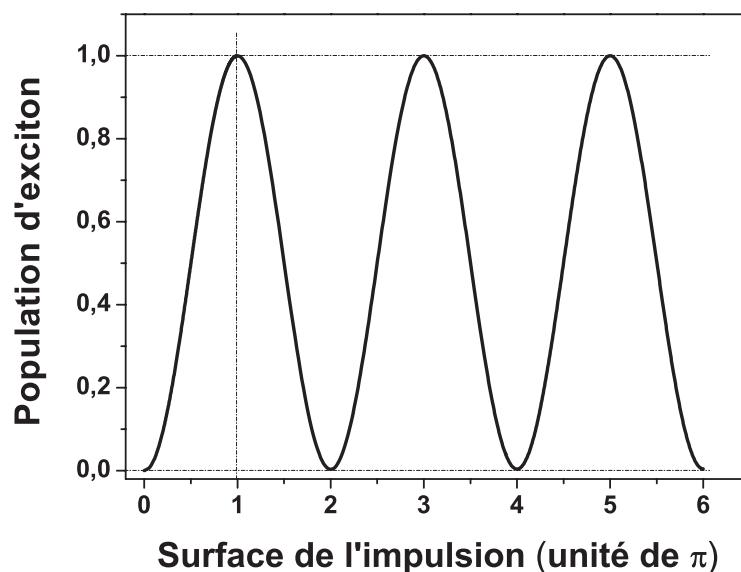


FIGURE 4.1 – Evolution de la population de l'état excité en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ (en unité de π), proportionnelle à la racine carrée de l'énergie de l'impulsion d'excitation. Simulation numérique d'un système à deux niveaux pour une excitation strictement résonante avec une impulsion de profil temporel gaussien limitée par la TF, de durée totale à mi-hauteur $\tau_0=3ps$.

Cette courbe est obtenue à l'aide d'une simulation numérique d'un système à deux niveaux, pour une excitation résonante avec la fréquence de la transition. L'impulsion d'excitation est de profil temporel gaussien, limitée par transformée de Fourier (TF), et de durée totale à mi-hauteur $\tau_0=3$ ps.

On peut utiliser le même formalisme pour décrire le passage adiabatique rapide. Il permet de préparer un état quantique avec une grande fidélité et de façon *robuste*. On excite cette fois-ci le système à deux niveaux à l'aide d'une impulsion à dérive de fréquence.

Le champ d'une impulsion à dérive de fréquence s'exprime à l'aide de l'expression A.21 établie dans l'Annexe A. Comme précédemment, nous l'écrivons sous la forme :

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{A}(t)e^{-i\omega_p t} \quad (4.23)$$

Avec ici (d'après l'expression A.21) :

$$\mathcal{A}(t) = E_0 \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_p}} \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right] \exp(-i\alpha t^2) \quad (4.24)$$

τ_p est la durée totale à mi-hauteur de l'intensité temporelle, et α caractérise la dérive de fréquence de l'impulsion. Ils sont définis de la façon suivante :

$$\tau_p = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \phi_0^{(2)}}{\tau_0^2} \right)^2} \quad (4.25)$$

Et :

$$\alpha = \frac{8(\ln 2)^2 \phi_0^{(2)}}{[\tau_0^4 + (4 \ln 2 \phi_0^{(2)})^2]} \quad (4.26)$$

Nous nous plaçons à présent dans un nouveau référentiel, qui est cette fois-ci en rotation accélérée par rapport au référentiel initial. La nouvelle transformation unitaire est alors définie par :

$$U'_p = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i(\omega_p + \alpha)t} \end{pmatrix} \quad (4.27)$$

On exprime ensuite l'hamiltonien $\tilde{\mathcal{H}}$ défini par la relation 4.10 dans ce nouveau référentiel :

$$\tilde{\mathcal{H}} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu}{2} [\mathcal{A}^*(t)e^{-i\alpha t^2} + \mathcal{A}(t)e^{-i(2\omega_p + \alpha)t}] \\ -\frac{\mu}{2} [\mathcal{A}(t)e^{i\alpha t^2} + \mathcal{A}^*(t)e^{i(2\omega_p + \alpha)t}] & \hbar[\omega_{01} - (\omega_p + 2\alpha)t] \end{pmatrix} \quad (4.28)$$

On fait de nouveau l'approximation séculaire (c'est-à-dire que l'on néglige les termes de haute fréquence). On obtient de cette façon un hamiltonien séculaire $\tilde{\mathcal{H}}_{sec}$:

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu}{2}\mathcal{A}^*(t)e^{-i\alpha t^2} \\ -\frac{\mu}{2}\mathcal{A}(t)e^{i\alpha t^2} & \hbar[(\omega_{01} - \omega_p) - 2\alpha t] \end{pmatrix} \quad (4.29)$$

Ce qui peut se réécrire, avec l'expression du champ 4.24 :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\mu}{2}E_0 \cdot \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_p}} \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right] \\ -\frac{\mu}{2}E_0 \cdot \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_p}} \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right] & \hbar[(\omega_{01} - \omega_p) - 2\alpha t] \end{pmatrix} \quad (4.30)$$

Ce qui donne de façon plus concise :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec} = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega(t)}{2} \\ \frac{\Omega(t)}{2} & -\Delta(t) \end{pmatrix} \quad (4.31)$$

$\Delta(t)$ est le désaccord à la fréquence instantanée de l'impulsion, qui, dans le cas du passage adiabatique rapide, évolue au cours du temps :

$$\Delta(t) = [(\omega_p - \omega_{01}) + 2\alpha t] \quad (4.32)$$

Et $\Omega(t)$ est la fréquence de Rabi, réelle dans ce référentiel :

$$\Omega(t) = -\mu \frac{E_0}{\hbar} \cdot \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_p}} \exp -2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \quad (4.33)$$

On voit donc qu'à *chaque instant*, l'hamiltonien séculaire a la même forme que celui obtenu dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier. On peut diagonaliser cet hamiltonien comme précédemment. On aboutit alors à des expressions identiques pour les énergies propres et les vecteurs d'états (équations 4.20 et 4.19), mais ils évoluent maintenant au cours du temps.

On peut alors tracer les énergies propres du système en fonction du temps (Figure 4.2).

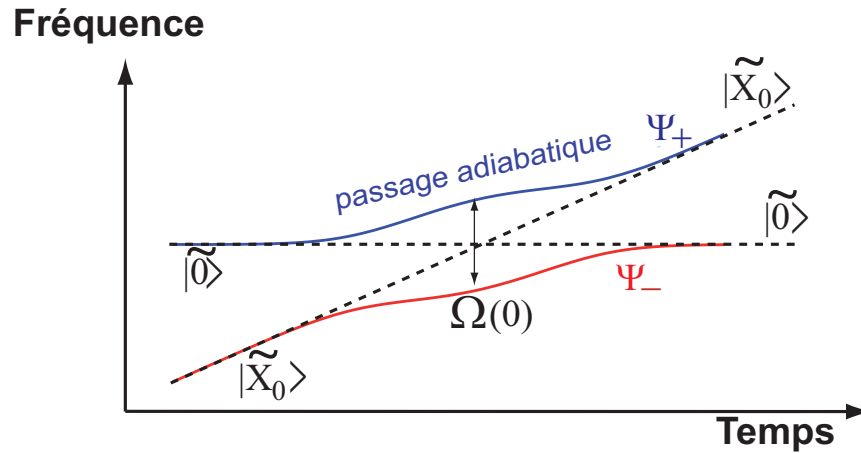


FIGURE 4.2 – Position des niveaux d'énergie d'un système à deux niveaux couplé à un champ électrique à dérive de fréquence. Ici, $\phi^{(2)} < 0$.

On voit sur les courbes de la Figure 4.2 que la fréquence de Rabi $\Omega(t)$ est beaucoup plus forte au centre du spectre que sur les bords. On peut également remarquer que le signe de la dérive de fréquence choisie n'est pas important : selon le cas, on parcourt la branche d'énergie du haut ou celle du bas (en inversant l'axe des temps dans ce dernier cas), si l'on part de l'état $|\tilde{X}_0\rangle$.

Le système passe en fait par une succession d'états propres calculés à chaque instant comme dans un modèle stationnaire. On se déplace le long d'une branche par continuité, sans effectuer de saut d'une branche à l'autre. Cela n'est possible que si l'hamiltonien évolue lentement au cours du temps. Dans ce cas, il ne contient pas les fréquences qui permettraient de passer d'une branche à l'autre, et le système reste dans l'état $|\psi_+\rangle$ (ou $|\psi_-\rangle$, selon le signe de la dérive de fréquence introduite) tout au long de l'interaction [130]. Le système ne change pas d'état propre ; c'est la *composition* de celui-ci qui change au cours du temps.

On retrouve donc la signification du terme *adiabatique* d'après Ehrenfest [82] : *"adiabatic in the quantum mechanical sense, or as it is sometimes called in the Ehrenfest sense, describes the evolution of a statistical ensemble when some external parameter is changed in such a way that no transitions are induced and the population of the various energy levels remain unchanged."*

Le passage adiabatique rapide permet donc de préparer un état quantique de façon robuste : il y a inversion totale de population à partir d'une certaine énergie de l'impulsion d'excitation.

Sur la courbe 4.3 ci-dessous, on a représenté l'évolution de la population de l'état excité en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ (en unité de π) définie par la relation 4.22. Cette courbe est obtenue à l'aide d'une simulation numérique d'un système à deux niveaux, pour une excitation résonante avec la fréquence de la transition ($\omega_p = \omega_{01}$). L'impulsion d'excitation présente une dérive de fréquence linéaire caractérisée par $\phi^{(2)} = -40ps^2$.

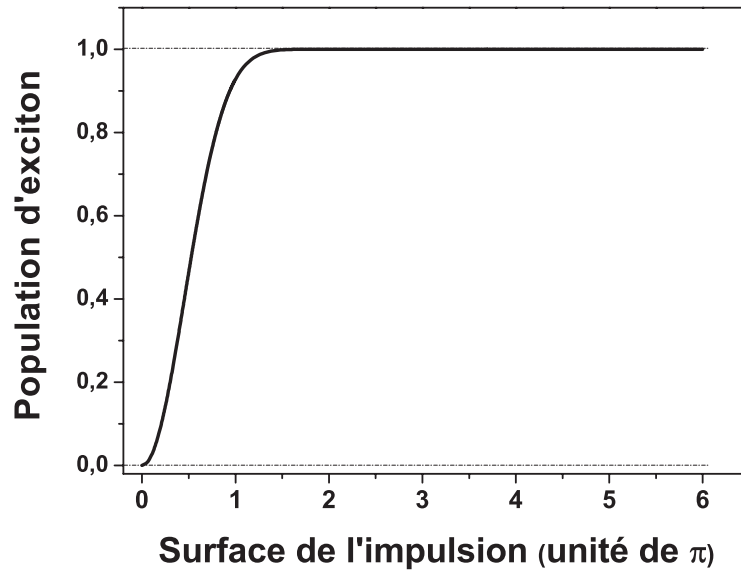


FIGURE 4.3 – Evolution de la population de l'état excité en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ (en unité de π), proportionnelle à la racine carrée de l'énergie de l'impulsion d'excitation. Simulation numérique d'un système à deux niveaux pour une excitation strictement résonante avec une impulsion présentant une dérive de fréquence linéaire $\phi^{(2)} = -40ps^2$ pour une durée d'impulsion τ_0 limitée par transformée de Fourier de 3 ps.

Formalisme de pseudo-spin effectif

Les oscillations de Rabi et le passage adiabatique peuvent également s'interpréter à l'aide du formalisme de pseudo-spin effectif, qui est détaillé dans l'Annexe C.

Un "spin fictif" $\vec{S}$ est associé au système à deux niveaux (qui se compose du niveau fondamental de boîte quantique $|0\rangle$ et de l'exciton $|X_0\rangle$). Cette approche, analogue à celle que nous développons dans le chapitre 3 pour décrire la dynamique de spin de l'exciton, permet d'interpréter les oscillations de Rabi et le passage adiabatique rapide de façon simple.

Le mouvement du pseudo-spin effectif, dont le calcul est présenté dans l'Annexe C, peut s'écrire de façon concise :

$$\frac{d\langle\vec{S}\rangle(t)}{dt} = \vec{\Omega}_{\mathcal{T}}(t) \wedge \langle\vec{S}\rangle(t) \quad (4.34)$$

$\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ est le vecteur "Rabi généralisé" dont les composantes s'expriment :

$$\vec{\Omega}_{\mathcal{T}} = \begin{pmatrix} \Omega(t) \\ 0 \\ \Delta \end{pmatrix} \quad (4.35)$$

Sa norme est la fréquence de Rabi généralisée $\Omega_{\mathcal{T}}$:

$$|\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}| = \sqrt{|\Omega^R(t)|^2 + |\Omega^I(t)|^2 + \Delta^2} = \sqrt{|\Omega(t)|^2 + \Delta^2} = \Omega_{\mathcal{T}} \quad (4.36)$$

Avec $\Omega^R(t)$ et $\Omega^I(t)$ les parties réelles et imaginaires de la fréquence de Rabi résonante du système.

$\Omega(t)$ est réel dans les situations que nous venons d'étudier : excitation par une impulsion limitée TF (*cas des oscillations de Rabi*) ou par une impulsion à dérive de fréquence (*cas du passage adiabatique rapide* ; en faisant la transformation unitaire adaptée détaillée précédemment). Le vecteur de Rabi généralisé $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ n'a donc plus de composante sur (Oy), et le mouvement du spin fictif s'effectue dans un plan.

- Dans le cas d'une excitation par une impulsion limitée par transformée de Fourier (cas des *oscillations de Rabi*), le mouvement de précession du pseudo-spin effectif autour de $\vec{\Omega}_T$ dans le référentiel tournant est représenté sur la Figure 4.4.

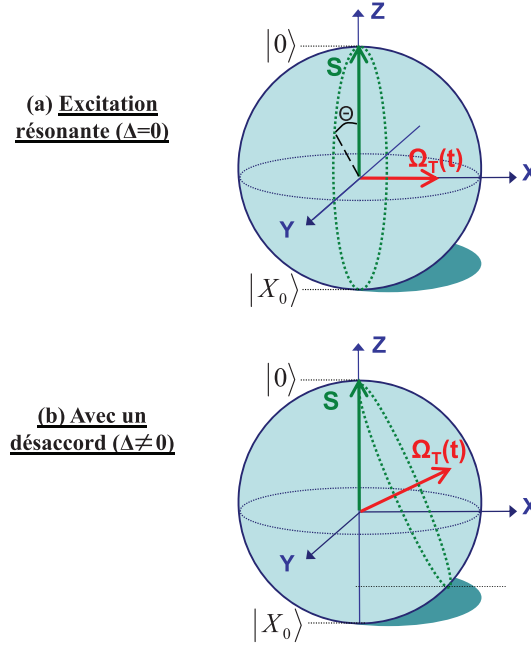


FIGURE 4.4 – Mouvement du pseudo-spin effectif associé au système à deux niveaux $\{|0\rangle, |X_0\rangle\}$ couplé à un champ électrique de profil temporel gaussien, limité par transformée de Fourier (a) dans le cas d'une excitation strictement résonnante (b) dans le cas d'un désaccord entre la fréquence d'excitation et la fréquence de la transition. Ω_T se situe dans le plan (xOz) . L'angle de rotation du pseudo-spin Θ est donné par $\Theta = \int_0^\tau \Omega_T dt$, τ étant la durée de l'interaction.

- Lorsque la fréquence centrale de l'impulsion d'excitation est strictement résonnante avec la fréquence de transition de l'exciton ($\Delta=0$), les populations oscillent entre l'état fondamental ($|0\rangle$) et l'état excité ($|X_0\rangle$), avec un transfert total de population pour un angle de précession Θ de $(2n + 1)\pi$.
- En revanche, si la fréquence centrale de l'impulsion d'excitation présente un désaccord avec la fréquence de transition de l'exciton ($\Delta \neq 0$), le vecteur $\vec{\Omega}_T$ présente une composante sur l'axe (Oz) . Le transfert de population de l'état fondamental vers l'état excité n'est pas total : les oscillations présentent un moins bon contraste.

Si le laser est fortement désaccordé, les états propres sont simplement ceux du système à deux niveaux non perturbé : le pseudo-spin ne précesse plus (lorsqu'il correspond initialement à l'état fondamental).

- Lorsqu'on excite le système avec une impulsion à dérive de fréquence (cas du *passage adiabatique rapide*, Δ dépend du temps).

A chaque instant, le pseudo-spin effectif est colinéaire à $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ dans le référentiel tournant, comme cela est représenté sur la Figure 4.5.

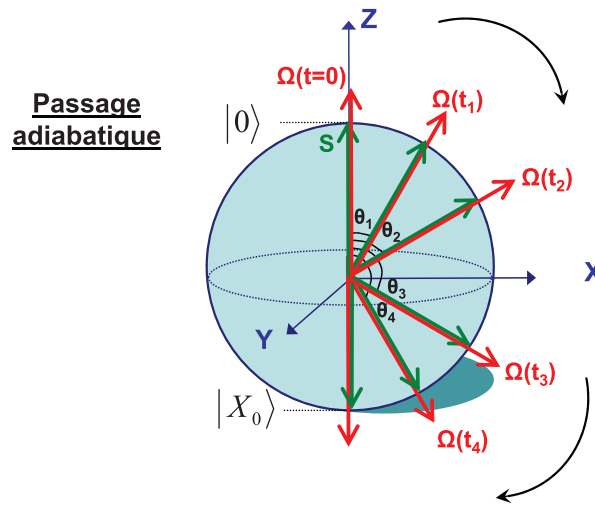


FIGURE 4.5 – Mouvement de précession du pseudo-spin effectif associé au système $\{|0\rangle, |X_0\rangle\}$ couplé par un champ présentant une dérive de fréquence, dans le référentiel tournant. Le pseudo-spin a un mouvement plan. A chaque instant, il est colinéaire avec le vecteur de Rabi généralisé $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}(t)$.

Le transfert de population est total dès que le spin fictif a effectué une précession d'un angle π , ce qui correspond exactement à l'angle de rotation du vecteur $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$. La génération de l'exciton est donc *robuste*. Le signe de la dérive de fréquence affecte uniquement le sens du vecteur Rabi généralisé $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$:

- Pour une dérive de fréquence négative (comme avec l'étireur à réseaux), le vecteur $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ est initialement orienté vers le haut : le spin fictif reste constamment parallèle à ce vecteur tout au long de sa précession.

- En revanche, lorsque la dérive de fréquence introduite est positive, le vecteur $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ est initialement orienté vers le bas : le spin fictif est cette fois-ci constamment anti-parallèle à ce vecteur tout au long de sa précession.

Le critère d'adiabaticité peut s'énoncer simplement à l'aide de ce formalisme. L'approximation adiabatique est en effet valable si l'angle θ dont tourne le vecteur de Rabi généralisé $\Omega_{\mathcal{T}}$ varie lentement devant sa norme. De cette façon, le pseudo-spin reste colinéaire à *chaque instant* avec le vecteur $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}(t)$: on reste constamment dans un état propre du système. Cela s'écrit :

$$\forall t \quad |\dot{\theta}| \leq |\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}(t)| \quad (4.37)$$

On obtient :

$$\forall t \quad \boxed{\dot{\theta} \leq \sqrt{\Omega(t)^2 + \Delta(t)^2}} \quad (4.38)$$

En utilisant la relation :

$$\tan \theta = \frac{-\Omega(t)}{\Delta(t)} \quad (4.39)$$

Cela donne :

$$\dot{\theta} = \frac{\dot{\Omega}(t)\Delta(t) - \dot{\Delta}(t)\Omega(t)}{\Delta(t)^2 + \Omega(t)^2} \quad (4.40)$$

De sorte que le critère d'adiabaticité peut se réécrire [126, 127] :

$$\forall t \quad \boxed{\frac{|\dot{\Omega}(t)\Delta(t) - \dot{\Delta}(t)\Omega(t)|}{(\Delta(t)^2 + \Omega(t)^2)^{\frac{3}{2}}} \leq 1} \quad (4.41)$$

Ce critère doit être vérifié à chaque instant.

Afin de le visualiser, nous traçons le terme de gauche de l'inégalité 4.41 sur la représentation en trois dimensions de la Figure 4.6, en fonction de la durée de l'interaction et de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$. Le critère d'adiabaticité est valide tant que la hauteur de ce graphe est inférieure à 1.

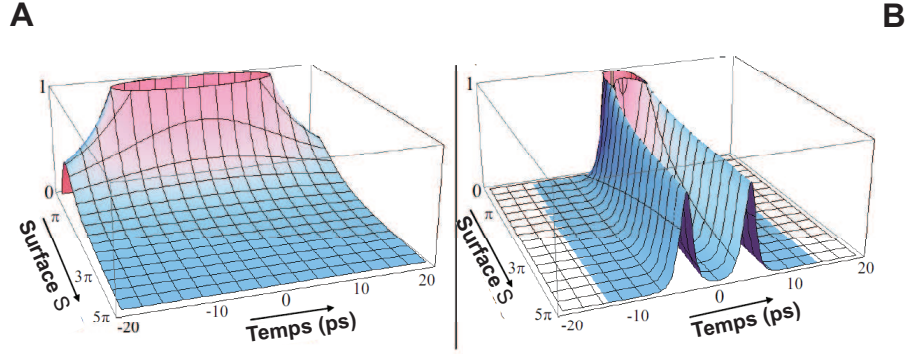


FIGURE 4.6 – Visualisation à 3D du critère d'adiabaticité : (A) pour une dérive de fréquence importante de $\phi^{(2)} = -40ps^2$ et $\tau_0 = 3ps$ (durée à mi-hauteur de l'impulsion laser limitée TF), le critère est valide dès que la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ devient supérieure à 1.5π . (B) pour une dérive de fréquence plus faible de $\phi^{(2)} = -2ps^2$ et $\tau_0 = 3ps$, le critère n'est pas valide.

Nous présentons deux situations :

- Le premier cas (Figure 4.6(A)) correspond à une dérive de fréquence importante ($\phi^{(2)} = -40ps^2$). Le critère d'adiabaticité est alors valide dès que la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ devient supérieure à 1.5π .
- Pour une faible dérive de fréquence ($\phi^{(2)} = -2ps^2$), en revanche, le critère n'est pas vérifié (Figure 4.6(B)). C'est aux points de constriction du diagramme représentant les énergies propres en fonction du temps (Figure 4.2), à l'endroit où la fréquence de Rabi généralisée Ω_T est minimale (Figure 4.2), que la condition d'adiabaticité est critique.

4.2 Mise en oeuvre expérimentale

Pour observer les oscillations de Rabi et le passage adiabatique rapide de l'exciton, nous avons tenu compte d'un certain nombre de contraintes liées à ce type d'expérience. Cela s'est traduit, expérimentalement, par de nombreux choix et développements techniques :

- Tout d'abord, l'état de charge des boîtes doit être contrôlé. Nous pourrions de cette façon isoler un système à deux niveaux de façon fiable. Il se composera, dans notre cas, de l'état fondamental de boîte noté $|0\rangle$ et de l'état d'exciton noté $|X_0\rangle$. C'est pourquoi les échantillons choisis, que nous présentons dans le paragraphe 4.2.1.1, sont des boîtes quantiques de type *InAs/GaAs* insérées dans des diodes de type n-Schottky. Leur structure particulière permet d'isoler la transition que l'on désire étudier, qui correspond à un état de charge donné, en modifiant simplement une tension de grille [131].
- Ensuite, pour rester dans le régime cohérent, il est nécessaire d'exciter la boîte quantique à résonance et de détecter le signal de luminescence. Pour cela, une nouvelle tête de microscope a été développée : elle permet d'exciter les boîtes quantiques à résonance (sur leur niveau fondamental) avec une réjection optimale du signal parasite de la source d'excitation. Elle est décrite de façon détaillée dans le chapitre 2.

Parallèlement, nous utilisons un nouveau schéma de détection, qui tire parti de l'effet tunnel dans nos échantillons. Nous verrons en effet que pour certaines valeurs de tension de grille spécifiques, l'exciton chargé X^- est un bon état spectateur : il constitue une sonde directe de la population d'exciton créée, nous permettant de détecter la luminescence à quelques meV de la transition excitée.

- Enfin, il faut exciter les boîtes quantiques avec des impulsions plus courtes que le temps de déphasage du système. Nous utilisons donc un laser *Ti : Saphir* impulsif délivrant des impulsions d'une durée d'environ 3ps.

Nous présentons dans cette partie ces différents aspects techniques, en discutant en particulier des défauts identifiés dans notre dispositif.

4.2.1 Les outils expérimentaux

Nous présentons dans cette partie l'échantillon étudié et le schéma de détection associé : ces deux développements techniques ont conditionné le succès de nos expériences.

4.2.1.1 L'échantillon

L'échantillon étudié a été réalisé par A. Lemaître au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures de Marcoussis. Il est formé de l'empilement de couches présenté sur la Figure 4.7.

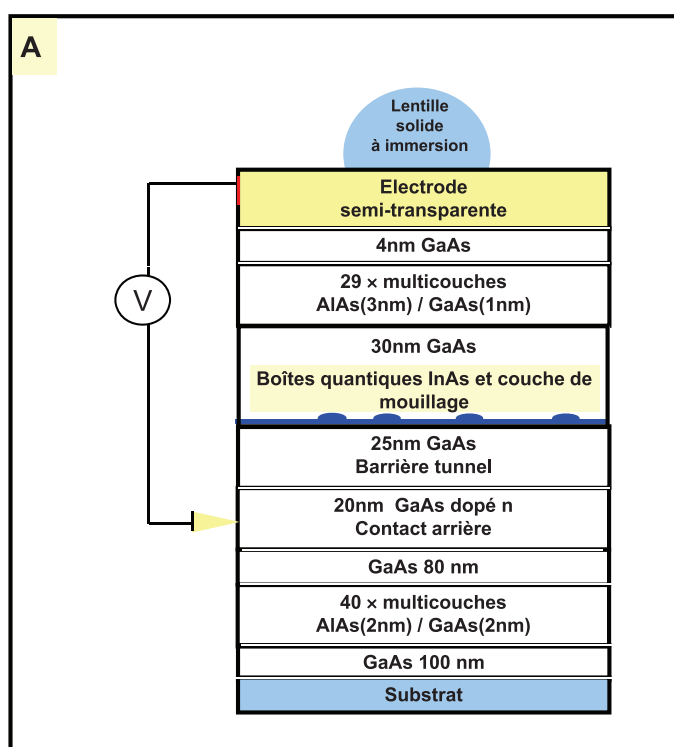


FIGURE 4.7 – Schéma de la structure des échantillons à charge ajustable

Cet échantillon est constitué de boîtes quantiques de type $InAs/GaAs$ insérées dans une diode de type n-Schottky (échantillon à charge ajustable). En utilisant l'effet tunnel, nous pouvons contrôler la charge présente dans la boîte. Les premières diodes Schottky incluant des boîtes quantiques furent développées par l'équipe de P. M. Petroff afin de déterminer, par spectroscopie de la capacité électrique, les niveaux électroniques des états confinés dans les boîtes quantiques [131].

Comme dans le chapitre 3, une lentille solide à immersion est accolée à l'échantillon afin d'augmenter le rendement de collection. Nous nous intéressons à présent à la structure de bande de notre échantillon, dont nous présentons le schéma de principe sur la Figure 4.8¹ :

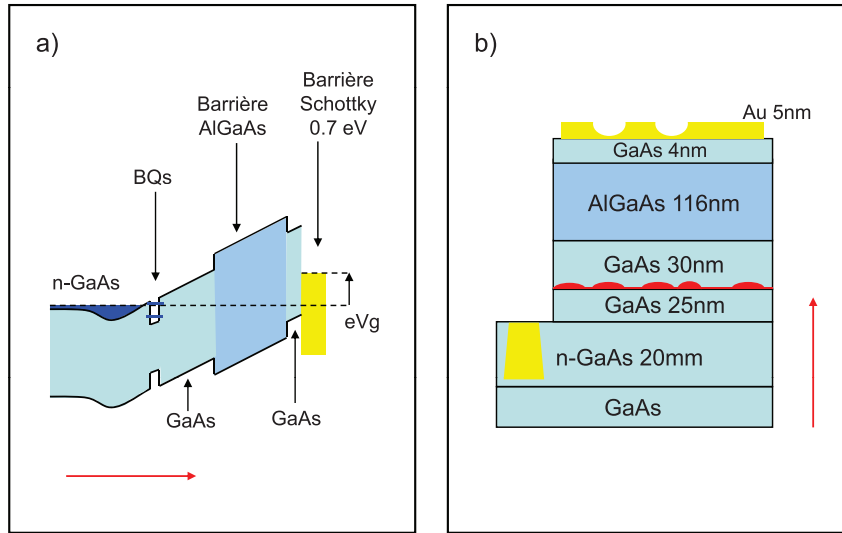


FIGURE 4.8 – (a) Structure de bande de la diode n-Schottky (b) Présentation de l'échantillon. Les flèches indiquent la direction de croissance

Le contact métal-semiconducteur (ou contact Schottky) provoque un transfert de charge du semiconducteur vers le métal, ce qui permet d'égaliser spatialement les potentiels chimiques, à tension de polarisation nulle ($V_g=0$). La distribution de cette charge ainsi que les énergies d'ionisation du métal et du semiconducteur déterminent la hauteur de la barrière Schottky. L'épaisseur de la zone de charge d'espace L_c ainsi créée est :

$$L_c = \sqrt{2\epsilon_r V_B / e.N} \quad (4.42)$$

V_B est la hauteur de barrière Schottky, qui vaut $\sim 700\text{mV}$ pour notre échantillon, et N est la densité de charge d'espace dans la zone désertée du semiconducteur [132]. Compte tenu du dopage résiduel des couches épitaxiées, cette épaisseur est de l'ordre du micromètre. Le champ électrique est donc essentiellement constant jusqu'au contact n de la structure.

1. Le dispositif permettant le contrôle de l'occupation des trous possède une structure identique, hormis le contact arrière qui est dopé p .

Le contact arrière est une couche de *GaAs* fortement dopée *n*, déposée à 25nm sous le plan de boîtes. Du fait de la très forte densité de dopage ($\sim 4.10^{18}\text{cm}^{-3}$ dans notre structure), la longueur de déplétion de cette couche pour se raccorder au champ électrique produit par la barrière Schottky est très faible, de l'ordre de quelques nanomètres. On peut donc considérer que le champ électrique au niveau du plan de boîte est uniquement imposé par le contact métal/semiconducteur et l'épaisseur de semiconducteur intrinsèque.

La barrière d'*AlGaAs* assure un couplage capacitif entre le plan de boîtes et le contact Schottky. Elle limite l'injection de courant lorsque le champ diminue. Ainsi, seul le contact arrière et les boîtes sont couplés par effet tunnel. En appliquant une tension entre la grille Schottky et le contact arrière (tension de grille V_g), on peut modifier les positions relatives des niveaux électroniques de la boîte quantique et du niveau de Fermi. De cette façon, un électron peut passer du *GaAs* massif dopé *n* au niveau fondamental de conduction de la boîte.

On contrôle également le nombre de charges qui peuvent peupler les niveaux discrets de la boîte par effet tunnel. Comme le montre la Figure 4.9, il est alors possible d'identifier puis de sélectionner en fonction de la tension de grille la transition que l'on désire étudier, qui correspond à un état de charge donné.

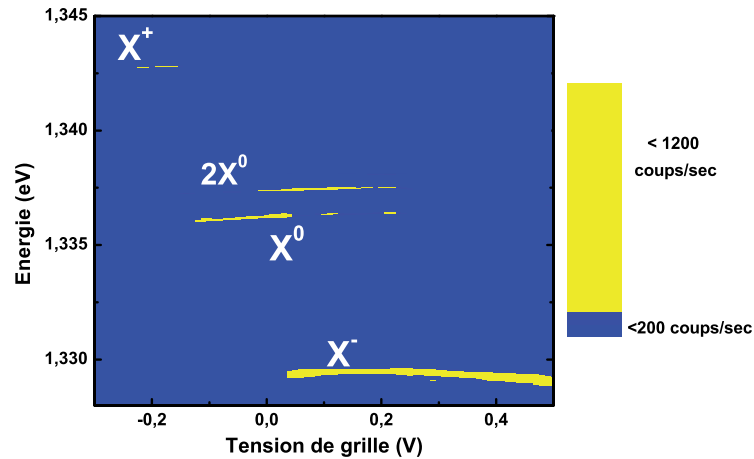


FIGURE 4.9 – Cartographie d'émission de la photoluminescence en fonction de la tension de grille V_g et de l'énergie d'émission. L'excitation se fait hors résonance à une énergie proche du gap de la couche de mouillage. Le trion X^+ , l'exciton neutre X_0 , le biexciton $2X_0$ et le trion X^- sont identifiés par leur apparition en fonction de la tension de grille et par leur position spectrale.

La Figure 4.9 est construite à partir d'une succession de spectres de photoluminescence. Elle présente les différents états de charge de la boîte quantique en fonction de la tension de grille V_g . L'excitation se fait hors résonance à une énergie proche du gap de la couche de mouillage ($E = 1.46\text{eV}$) à l'aide d'une diode laser. Dans ce régime d'excitation, il est possible d'isoler chaque transition en ajustant la tension de grille. Lorsque celle-ci augmente, le niveau fondamental de conduction de la boîte s'abaisse. De cette façon, à partir d'une certaine tension, un électron peut peupler la boîte par effet tunnel. On peut identifier les domaines de tension où chaque raie de luminescence est présente :

1. L'exciton neutre X_0 luminesce pour une tension de grille V_g comprise entre -0.123V et 0.04V .
2. Le bi-exciton $2X_0$, identifié par son comportement super-linéaire en puissance, luminesce pour une tension de grille V_g comprise entre -0.05V et 0.22V .
3. Le trion négatif X^- luminesce pour une tension de grille V_g comprise entre 0.03V et 0.5V environ. Il se situe à une énergie plus faible que l'exciton neutre, à environ 6 meV , ce qui correspond à l'"énergie de liaison du trion" (correction coulombienne du trion négatif par rapport à l'exciton [133, 134]).
4. Enfin, une dernière raie provenant de la même boîte est identifiée : il pourrait s'agir du trion chargé X^+ , qui luminesce pour une tension de grille V_g comprise entre -0.19V et -0.16V . Dès lors que le champ électrique est suffisamment fort, il se peut que l'électron de l'exciton neutre s'échappe pour laisser un trou, présent dans la boîte lors d'une absorption de photon ultérieure. Une autre possibilité est qu'un second photon soit absorbé : c'est alors le bi-exciton qui se transforme en trion positif.

Notons enfin que, pour certaines valeurs de tension particulières, plusieurs transitions peuvent coexister.

4.2.1.2 Un schéma de détection original

Pour observer les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique de l'exciton dans une boîte quantique, il faut mesurer la population d'exciton créée sous une excitation strictement résonante. Pour y parvenir, le signal peut être détecté électriquement en photocourant [68, 123] ou par des techniques de transmission différentielle [1, 135]. Détecter le signal de *luminescence* d'une boîte quantique sous excitation strictement résonante est plus difficile : l'émission de l'exciton est masquée par le signal rétrodiffusé du laser d'excitation. Sur un ensemble de boîtes, on peut utiliser des techniques de conversion paramétrique [10]. Elles ne sont pas applicables au cas d'une boîte unique dont le niveau de signal est trop faible. Ce problème de détection a été résolu dans des boîtes quantiques uniques grâce à l'utilisation d'échantillons placés dans des structures de type guide d'onde [136, 71] : la détection est de cette façon discriminée spatialement de l'excitation, qui se fait par la tranche.

Nous proposons ici une nouvelle stratégie expérimentale, qui consiste à utiliser un schéma de détection original, mettant à profit l'effet tunnel dans nos échantillons. Le but de cette partie est d'en présenter le principe.

Dans nos expériences, nous choisissons une tension de grille $V_g=0.09$ V, proche du bord du plateau du trion X^- de la Figure 4.9. L'énergie de la source d'excitation est strictement résonante avec la transition de l'exciton neutre X_0 , et nous détectons la luminescence émise à l'énergie du trion X^- , à quelques meV. Ce schéma de détection, dont le principe est détaillé sur la Figure 4.10, a été validé très récemment par Paul Dalgarno dans l'équipe de R.Warburton à Heriot Watt University.

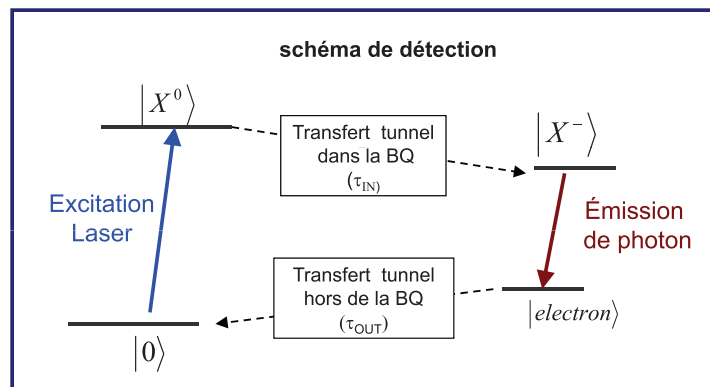


FIGURE 4.10 – Principe du schéma de détection. L'énergie de la source est résonante avec la transition de l'exciton X_0 , et le signal est détecté à l'énergie de transition du trion X^- .

Dans les conditions expérimentales que nous venons de décrire, plusieurs processus se produisent lors de l'excitation de la boîte quantique, expliquant la faisabilité de notre schéma de détection. Les différentes étapes qui interviennent sont représentées sur le schéma simplifié de la Figure 4.11 :

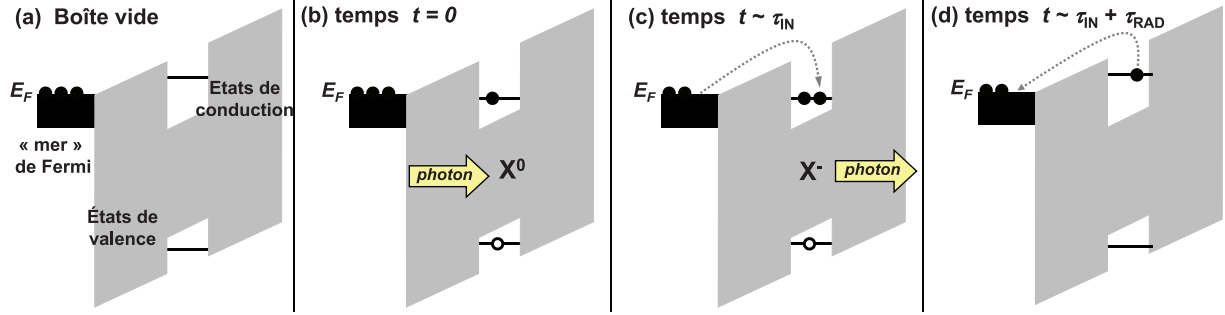


FIGURE 4.11 – Présentation des différentes étapes qui se produisent lors de l'excitation de la boîte quantique pour $V_g=0.09V$.

- Avant excitation, comme l'indique la Figure 4.11(a), la boîte est vide. Il n'y a pas d'électrons sur le niveau fondamental de conduction de la boîte quantique, qui se situe juste au-dessus du niveau de Fermi. Un photon du laser, d'énergie égale à la transition de l'exciton, pourra donc être absorbé.
- Ensuite, sous excitation, un électron passe de l'état de valence à l'état de conduction de la boîte : une paire électron-trou en interaction coulombienne (*exciton*) est créée. Ceci se traduit de manière *effective* par l'abaissement du niveau fondamental de conduction de la boîte de quelques dizaines de meV sous l'effet du potentiel du trou². Il se trouve juste en dessous du niveau de Fermi. De cette façon, un électron supplémentaire peut peupler la boîte par effet tunnel en un temps caractéristique τ_{in} (Figure 4.11 [b - c]).
- Après la recombinaison radiative du trion X^- , l'électron résident n'est plus en interaction coulombienne avec le trou. Il se trouve à présent sur un niveau d'énergie plus haut que le niveau de Fermi. L'électron peut donc être émis par effet tunnel par la boîte en un temps caractéristique τ_{out} de l'ordre de 1 à 100ps [137, 138], comme l'indique la Figure 4.11(d). On retrouve finalement le même état initial lorsque l'impulsion suivante arrive.

2. Il s'agit ici d'une vision *imaginée* d'un phénomène complexe à trois particules permettant une compréhension simple et intuitive du problème.

Ce schéma de détection n'est pertinent que si le trion X^- joue bien le rôle d'*état spectateur*, témoin de la population créée sur l'exciton. Ce n'est le cas que si le temps tunnel τ_{in} remplit deux contraintes de temps :

1. Il faut, d'une part, qu'il soit inférieur au temps de désexcitation radiative de l'exciton τ_{rad} , de façon à ce que la population présente sur celui-ci soit transférée au trion de façon prépondérante.
2. D'autre part, pour rester en régime cohérent, le temps tunnel doit être supérieur au temps d'interaction entre le système à deux niveaux et l'impulsion laser. En effet, l'exciton en tant qu'état quantique disparaît lors de la capture d'un électron par effet tunnel pour former le trion. Le temps tunnel détermine donc essentiellement le temps de cohérence du système.

Pour évaluer le temps tunnel τ_{in} dans nos expériences, nous avons comparé l'intensité de photoluminescence de l'exciton neutre X_0 et celle du trion X^- à la tension de grille choisie ($V_g=0.09$ V). Le spectre de photoluminescence de la Figure 4.12 montre que l'intensité d'émission du trion X^- est environ 15 fois plus forte que celle de l'exciton X_0 . Ce ratio est obtenu en effectuant un ajustement lorentzien des raies de luminescence.

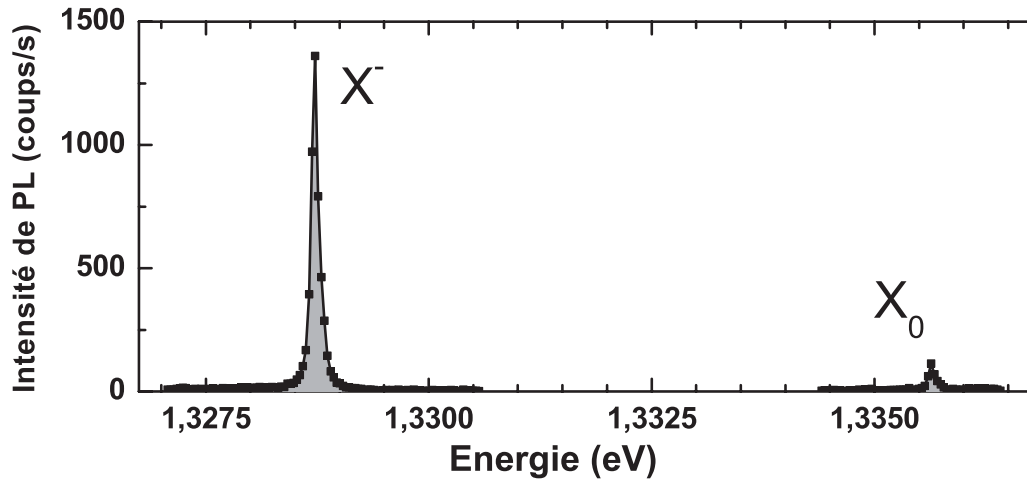


FIGURE 4.12 – Présentation des spectres de photoluminescence avec $V_g=0.09$ V, pour une excitation à une énergie proche de l'énergie du gap de la couche de mouillage. Le ratio entre l'intensité de luminescence du trion X^- et de l'exciton X_0 vaut environ 15, ce qui donne une estimation du temps tunnel τ_{in} .

Nous pouvons de cette façon évaluer expérimentalement l'ordre de grandeur du temps tunnel τ_{in} dans notre structure :

$$\tau_{in} \approx \frac{\tau_{rad}}{15} = 67ps \quad (4.43)$$

τ_{rad} désigne le temps radiatif (pris identique pour le trion et l'exciton). Il vaut de 700ps à 1ns dans nos structures (1ns dans l'application numérique). Le temps tunnel est donc a priori inférieur d'un ordre de grandeur au temps de recombinaison radiative de l'exciton.

De plus, on reste en régime cohérent car ce temps est supérieur à la durée de l'interaction entre l'impulsion et le système à deux niveaux. En effet, avec notre laser Ti :Sa, dans le cas des oscillations de Rabi, la durée totale à mi-hauteur de l'impulsion τ_0 (limitée par transformée de Fourier) vaut environ 3 ps. Cette durée peut atteindre $\tau_p \sim 40$ ps dans les expériences de passage adiabatique rapide où l'impulsion est étirée temporellement.

Validation expérimentale du schéma de détection Nous avons confirmé la validité de ce schéma de détection expérimentalement. Nous excitions de façon résonante la transition de l'exciton neutre X_0 à l'aide de la diode à cavité étendue, et nous détectons la luminescence à l'énergie d'émission du trion X^- , quelques meV plus loin. Un très bon rapport signal sur bruit est obtenu : l'intensité du signal de boîte dépasse largement celle du signal parasite du laser d'excitation, comme le montre la Figure 4.13 (c) :

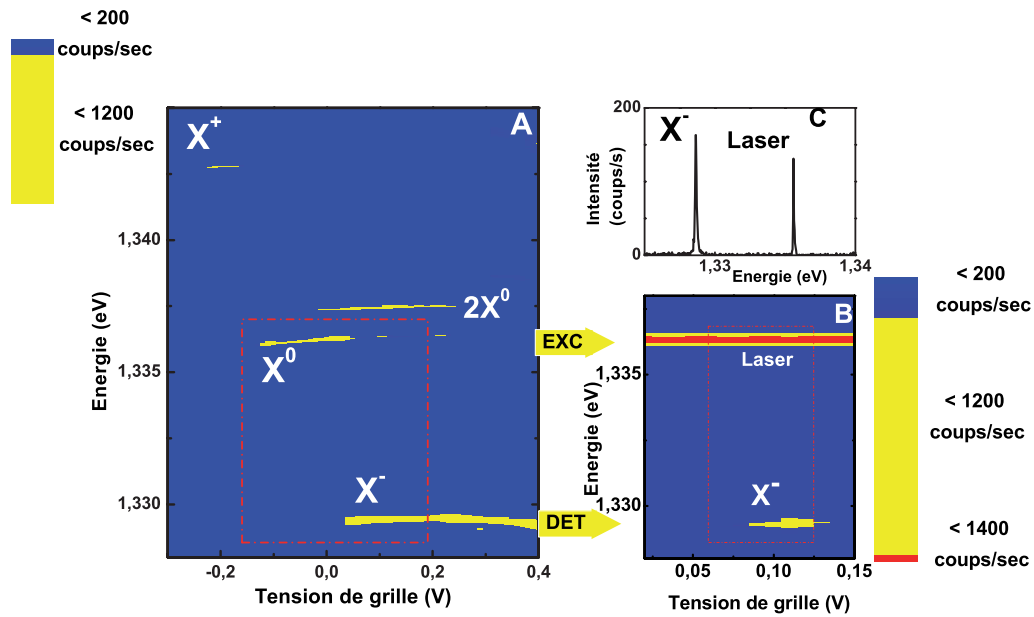


FIGURE 4.13 – Validation expérimentale de notre schéma de détection.

(A) Cartographie d'émission de la photoluminescence en fonction de la tension de grille V_g et de l'énergie d'émission (Figure 4.9). L'excitation se fait hors résonance à une énergie proche du gap de la couche de mouillage.

(B) Cartographie d'émission de la photoluminescence en fonction de la tension de grille V_g et de l'énergie d'émission. L'excitation se fait à l'énergie de la transition X_0 , à quelques meV de l'émission du trion X^- . Le plateau du trion X^- apparaît sur une plage de tension de 50mV.

(C) Spectre typique obtenu pour $V_g=0.09$ V. L'émission du trion X^- reflète la population créée sur l'exciton neutre X_0 . On peut constater que le bruit parasite du laser est en-dessous du bruit noir de la CCD : la détection du signal de boîte ne se trouve pas aveuglée.

Nous mesurons de cette façon la population d'exciton créée *optiquement* en excitant de façon résonante. La détection de la luminescence se fait à quelques meV de la transition excitée, à l'énergie d'émission du trion.

4.2.2 Limites expérimentales et modélisation

Nous présentons ici les limites de notre dispositif expérimental. Nous montrons en particulier que le système que nous devons considérer est plus complexe : il s'agit d'un système à quatre niveaux. Les incertitudes sur le spectre du laser d'excitation sont également évoquées.

4.2.2.1 Mise en évidence des états propres de l'exciton neutre par spectroscopie d'absorption

Notre schéma de détection permet d'éliminer le laser en polarisation. On excite l'exciton neutre avec une polarisation linéaire π^X selon les axes cristallographiques de l'échantillon $[110]$ ou $[1\bar{1}0]$, de sorte qu'en principe, on ne sélectionne qu'un seul des deux états propres de l'exciton ($|X\rangle$ ou $|Y\rangle$). On détecte ensuite la luminescence émise par le trion X^- en polarisation croisée π^Y , ce qui est possible du fait que l'émission de celui-ci n'est pas polarisée. Nous réalisons de cette façon une expérience de *spectroscopie d'absorption* de l'exciton car le mécanisme de capture d'un électron par l'exciton est irréversible : l'exciton disparaît au profit du trion.

En réalité, il existe des déviations par rapport au schéma de principe que nous venons de décrire :

- Il peut y avoir une erreur dans la direction de polarisation du laser. Elle est en effet ajustée au moyen de réglages mécaniques manuels, ce qui ne permet pas d'atteindre une précision angulaire absolue.
- Du fait des fortes contraintes dans les boîtes de type InAs/GaAs de type Stransky Krastanov, les axes $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ peuvent s'éloigner des directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$.

Nous excitons donc en fait simultanément les deux états propres de l'exciton neutre $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Nous avons voulu quantifier cette erreur de polarisation expérimentalement. Pour cela, nous avons utilisé une diode laser à cavité étendue (d'une largeur spectrale de 1,3 neV) dont nous balayons la longueur d'onde. Nous détectons ensuite, pour chaque énergie d'excitation, l'intensité émise par le trion. Nous mesurons de cette façon l'écart énergétique entre les deux états propres de l'exciton, et leurs forces d'oscillateur effectives relatives.

Le rapport des forces d'oscillateur effectives des deux états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de l'exciton est évalué expérimentalement sur la Figure 4.14. A faible puissance, ce rapport ne doit pas dépendre de la puissance d'excitation. Il varie toutefois de 4.26 à 5.86 lorsque la puissance augmente (sur deux ordres de grandeurs ici). Nous retiendrons la valeur 5 pour les simulations ultérieures.

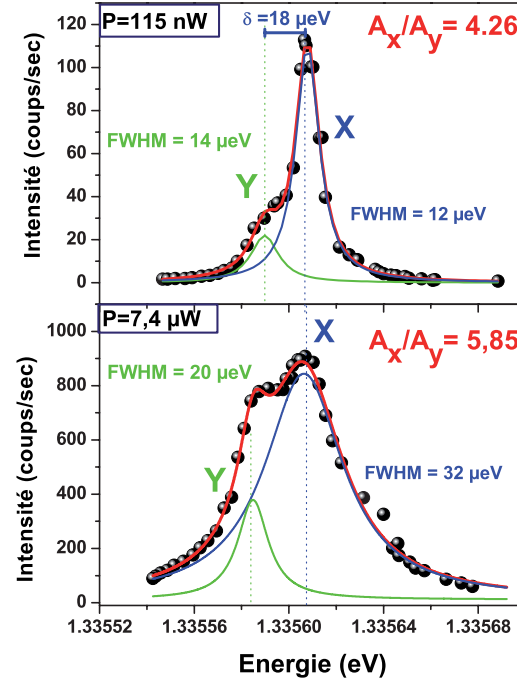


FIGURE 4.14 – Spectres d'excitation de l'émission du trion X^- permettant la mise en évidence des états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de l'exciton neutre : le rapport des forces d'oscillateurs effectives de ces deux états est d'environ 5, et leur écart énergétique vaut $17\mu\text{eV}$.

La Figure 4.14 montre bien que notre sélectivité en polarisation n'est pas idéale : nous verrons dans le paragraphe suivant comment nous pouvons tenir compte de cette réalité expérimentale.

L'augmentation du rapport des forces d'oscillateur effectives relatives avec la puissance peut s'expliquer par un comportement de saturation suivant une loi du type :

$$I = I_{sat} \frac{\tilde{P}}{\tilde{P} + 1} \quad (4.44)$$

$\tilde{P}$ désigne la puissance d'excitation normalisée. I_{sat} est l'intensité de saturation.

Cette hypoythèse semble confirmée par les mesures expérimentales de la Figure 4.15, dont le comportement s'ajuste bien avec l'expression 4.44.

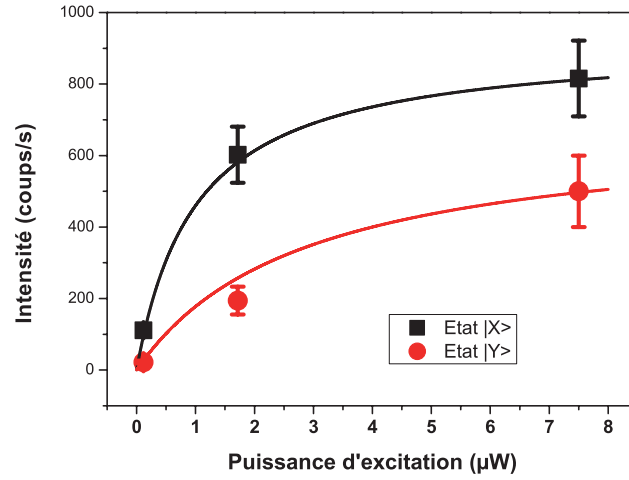


FIGURE 4.15 – Evolution de l'intensité des raies de luminescence correspondant aux deux états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de l'exciton en fonction de la puissance d'excitation, avec apparition d'une saturation bien décrite par la relation 4.44.

D'autre part, nous remarquons que les raies s'élargissent lorsque la puissance du laser d'excitation augmente. La largeur de raie Γ suit en effet la relation suivante [139, 140] :

$$\Gamma = \Gamma_0 \sqrt{1 + \tilde{P}} \quad (4.45)$$

$\tilde{P}$ est la puissance normalisée, et Γ_0 est la largeur homogène de la raie de luminescence de forme lorentzienne (prise à $12\mu\text{eV}$ dans les ajustements présentés sur la Figure 4.16).

Expérimentalement, nous avons mesuré la largeur des raies de luminescence en fonction de la puissance du laser d'excitation. Nous trouvons bien, sur la Figure 4.16, l'allure attendue :

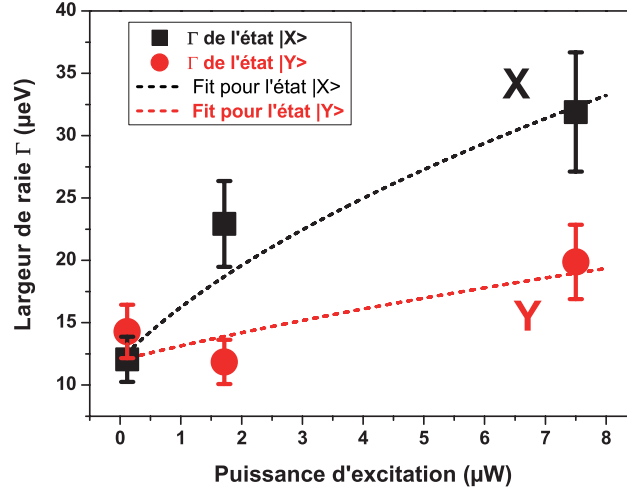


FIGURE 4.16 – Evolution de la largeur spectrale des raies de luminescence correspondant aux deux états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de l'exciton en fonction de la puissance d'excitation : les courbes sont ajustées de façon satisfaisante à l'aide de la relation 4.45.

Compte tenu du faible nombre de points de mesure et de leur incertitude, les résultats présentés sur les Figures 4.16 et 4.15 permettent uniquement de dégager certaines tendances.

4.2.2.2 Simulations d'un système à quatre niveaux

Il est nécessaire de faire une description plus précise des états de la boîte quantique, correspondant à la réalité expérimentale. En effet :

- Comme nous l'avons évoqué dans le paragraphe 4.2.2.1, malgré notre sélectivité en polarisation, nous excitons à la fois l'état $|X\rangle$ et l'état $|Y\rangle$ (avec une force d'oscillateur effective moindre) de l'exciton.
- De plus, la polarisation du laser est linéaire : il nous est donc possible en principe d'exciter également l'état de bi-exciton $|2X_0\rangle$.

Si nous avons utilisé un laser d'excitation polarisé circulairement, le bi-exciton aurait été éliminé, en accord avec les règles de sélection optique [122, 115]. Une

polarisation linéaire a été choisie pour deux raisons :

- Techniquement, la réjection d'un laser polarisé circulairement est beaucoup moins bonne qu'en polarisation linéaire dans notre dispositif.
- Ensuite, une polarisation circulaire conduirait à l'excitation simultanée et avec une force d'oscillateur comparable des deux états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de l'exciton, compliquant l'interprétation.

Les données expérimentales que nous présentons par la suite prouvent par ailleurs que le bi-exciton joue un rôle important dans nos expériences.

Nous avons cherché à tenir compte de ces limites expérimentales. Pour cela, nous avons effectué des simulations sous le logiciel Matlab en utilisant un algorithme numérique de type *Runge-Kutta*. Le système à quatre niveaux que nous considérons se compose du niveau fondamental de boîte $|0\rangle$, des deux états propres de l'exciton $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ et du bi-exciton $|2X_0\rangle$. Il est représenté sur la Figure 4.17.

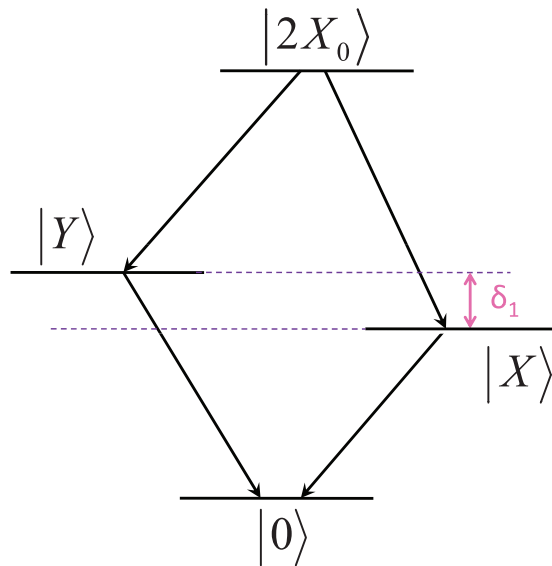


FIGURE 4.17 – Représentation de notre système à quatre niveaux.

Nous donnons ici brièvement le principe de calcul de ces simulations. Nous verrons par la suite qu'elles permettent de reproduire un certain nombre de tendances expérimentales. Cependant, nous travaillons encore actuellement à l'amélioration de

ce modèle théorique. Nous pensons en particulier que la dépendance en puissance de certains processus de déphasage (comme l'interaction avec les phonons) doivent être ajoutés afin de mieux tenir compte de la réalité expérimentale.

L'équation d'évolution de la matrice densité est celle d'un système à quatre niveaux *en interaction* avec son environnement. Elle s'écrit :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\tilde{\mathcal{H}}_{DE}, \tilde{\rho}] + \mathcal{L}[\tilde{\rho}] \quad (4.46)$$

L'hamiltonien $\tilde{\mathcal{H}}_{DE}$ pour le système à quatre niveaux est l'hamiltonien d'interaction écrit dans le référentiel tournant à la fréquence de la transition pour chaque état³(représentation d'interaction). Le changement de référentiel se fait à l'aide de l'opérateur unitaire U_I , qui s'écrit dans la base $\{\widetilde{|0\rangle}, \widetilde{|X\rangle}, \widetilde{|Y\rangle}, \widetilde{|2X_0\rangle}\}$:

$$U_I = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega^X t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\omega^Y t} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-i\omega^B t} \end{pmatrix}$$

Où $\omega^X, \omega^Y, \omega^B$ sont les fréquences des transitions $|0\rangle \rightarrow |X\rangle, |0\rangle \rightarrow |Y\rangle$ et $|0\rangle \rightarrow |2X_0\rangle$. Les nouveaux états propres sont alors définis de la façon suivante :

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = U_p^\dagger(t)|\psi(t)\rangle$$

Enfin, comme précédemment, on se place dans l'approximation séculaire. Un calcul complet permet finalement d'aboutir à l'hamiltonien $\tilde{\mathcal{H}}_{DE}$ suivant, écrit dans la base $\{\widetilde{|0\rangle}, \widetilde{|X\rangle}, \widetilde{|Y\rangle}, \widetilde{|2X_0\rangle}\}$:

$$\tilde{\mathcal{H}}_{DE} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \mu_X \mathcal{A}(t) e^{i\delta_X(t)} & \mu_Y \mathcal{A}(t) e^{i\delta_Y(t)} & 0 \\ \mu_X \mathcal{A}^*(t) e^{-i\delta_X(t)} & E_X & 0 & \mu_{BX} \mathcal{A}(t) e^{i\delta_{BX}(t)} \\ \mu_Y \mathcal{A}^*(t) e^{-i\delta_Y(t)} & 0 & E_Y & \mu_{BY} \mathcal{A}(t) e^{-i\delta_{BY}(t)} \\ 0 & \mu_{BX} \mathcal{A}^*(t) e^{-i\delta_{BX}(t)} & \mu_{BY} \mathcal{A}^*(t) e^{-i\delta_{BY}(t)} & E_B \end{pmatrix}$$

E_X, E_Y et E_B désignent respectivement les énergies de transition de l'état $|X\rangle$ et de l'état $|Y\rangle$ de l'exciton et du bi-exciton $2X_0$.

3. et non à la fréquence du champ ω_p comme dans l'étude théorique du paragraphe 4.1.2.

μ_X , μ_Y , μ_{BX} et μ_{BY} sont les moments dipolaires associés aux transitions respectives $|0\rangle \rightarrow |X\rangle$, $|0\rangle \rightarrow |Y\rangle$, $|X\rangle \rightarrow |2X_0\rangle$ et $|Y\rangle \rightarrow |2X_0\rangle$.

Dans un souci de simplicité, nous considérerons dans les simulations que les moments dipolaires μ_X et μ_{BX} associés aux transitions $|0\rangle \rightarrow |X\rangle$ et $|X\rangle \rightarrow |2X_0\rangle$ sont égaux [141]. De même, les moments dipolaires μ_Y et μ_{BY} associés aux transitions $|0\rangle \rightarrow |Y\rangle$ et $|Y\rangle \rightarrow |2X_0\rangle$ sont égaux mais cinq fois plus faibles que les précédents, en accord avec la mesure expérimentale des forces d'oscillateurs effectives relatives des deux transitions $|0\rangle \rightarrow |X\rangle$ et $|0\rangle \rightarrow |Y\rangle$ du paragraphe 4.2.2.1.

Enfin :

$$\begin{cases} \delta_X(t) = \omega^X - \omega_p \\ \delta_Y(t) = \omega^Y - \omega_p \\ \delta_{BX}(t) = \omega^B - \omega^X - \omega_p \\ \delta_{BY}(t) = \omega^B - \omega^Y - \omega_p \end{cases} \quad (4.47)$$

Le terme supplémentaire $\mathcal{L}[\tilde{\rho}]$ de l'équation 4.46 tient compte des phénomènes de relaxation non pris en compte dans l'hamiltonien d'interaction $\tilde{\mathcal{H}}_{DE}$. Il s'agit par exemple de la relaxation par émission spontanée, ou par effet tunnel vers l'état spectateur X^- .

Nous considérons le schéma de relaxation présenté sur la Figure 4.18, qui nous permet de déduire les temps de relaxation des populations et des cohérences :

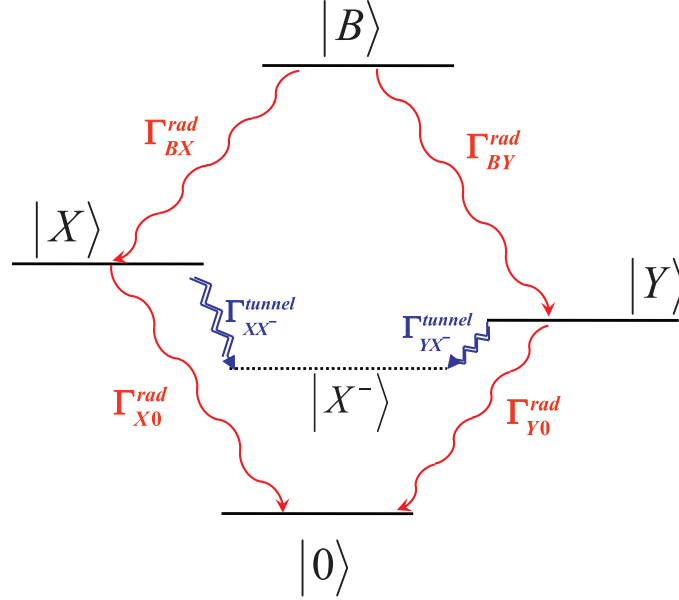


FIGURE 4.18 – Schéma de relaxation de notre système à quatre niveaux. La population du bi-exciton relaxe de façon radiative vers les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ avec un taux de recombinaison Γ_{BX}^{rad} et Γ_{BY}^{rad} . X^- joue seulement le rôle d'état spectateur. La population de l'exciton (états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$) relaxe de façon radiative vers l'état fondamental de la boîte $|0\rangle$ avec un taux de recombinaison radiative Γ_X^{rad} et Γ_Y^{rad} , ou par transfert tunnel vers le trion avec un taux tunnel qui vaut respectivement Γ_{X,X^-}^{tunnel} et Γ_{Y,X^-}^{tunnel} .

Pour écrire la matrice de relaxation $\mathcal{L}[\tilde{\rho}]$, nous utilisons le mode de description de Lindblad [142]. Elle s'écrit alors à partir des équations d'évolution suivantes sur les populations et les cohérences :

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\tilde{\rho}_{jj}}{dt} \right)_{relax} &= -\sum_k \Gamma_{j,k} \tilde{\rho}_{jj} + \sum_k \Gamma_{k,j} \tilde{\rho}_{kk} \quad (Populations) \\ \left(\frac{d\tilde{\rho}_{ij}}{dt} \right)_{relax} &= -\frac{1}{2} \sum_k (\Gamma_{i,k} + \Gamma_{j,k}) \tilde{\rho}_{ij} \quad (Cohérences) \end{aligned} \tag{4.48}$$

$\Gamma_{j,k}$ est le taux de "fuite" de l'état j vers l'état k . Dans notre expérience, il est inversement proportionnel au temps de recombinaison radiatif de chaque état et éventuellement au temps tunnel vers le trion X^- .

En accord avec notre schéma de détection, le signal expérimental que nous mesurons est en fait proportionnel à la population créée sur le trion, qui est un état spectateur sondant directement la population d'exciton. Il nous faut donc ajouter l'équation :

$$\frac{d\tilde{\rho}_{X-}}{dt} = \frac{\tilde{\rho}_X}{\tau_t} + \frac{\tilde{\rho}_Y}{\tau_t} - \frac{\tilde{\rho}_{X-}}{\tau_{rad}} \quad (4.49)$$

τ_t le temps tunnel (temps nécessaire à la capture d'un électron dans la boîte pour former le trion).

Nous considérerons que les taux de recombinaison radiatifs Γ_X^{rad} , Γ_Y^{rad} et que les taux tunnel $\Gamma_{X,X-}^{tunnel}$ et $\Gamma_{Y,X-}^{tunnel}$ sont égaux entre eux. Nous les écrirons respectivement Γ^{rad} et Γ^{tunnel} . Ils valent :

$$\Gamma^{rad} = \frac{1}{\tau_{rad}} \quad \text{et} \quad \Gamma^{tunnel} = \frac{1}{\tau_t} \quad (4.50)$$

τ_{rad} est le temps de recombinaison radiatif de l'exciton.

Le taux de recombinaison radiatif du bi-exciton est deux fois plus fort que celui de l'exciton (deux chemins de désexcitation sont possibles cette fois-ci). Nous prendrons donc Γ_{BX}^{rad} , et Γ_{BY}^{rad} égaux à :

$$\Gamma_B^{rad} = 2\Gamma_X^{rad} \quad (4.51)$$

Enfin, nous prenons dans les simulations les paramètres fixes suivants :

$$\begin{aligned} \sigma^X &= 10774,42 \text{ cm}^{-1} \\ \sigma^Y &= 10774,56 \text{ cm}^{-1} \\ \sigma^B - \sigma^X &= 10786,09 \text{ cm}^{-1} \\ \tau_{tunnel} &= 67 \text{ ps} \\ \tau_{rad} &= 800 \text{ ps} \\ \tau_p &= 400 \text{ ps} \end{aligned}$$

(4.52)

Les nombres d'onde σ^X , σ^Y , et σ^B (repéré ici par rapport à l'état $|X\rangle$ de l'exciton) sont issues de mesures expérimentales, et s'expriment en cm^{-1} .

4.2.2.3 Discussion sur le spectre

Nous avons d'autres incertitudes expérimentales, portant en particulier sur le spectre du laser. Nous le mesurons avant le passage du laser par le microscope sur la Figure 4.19 :

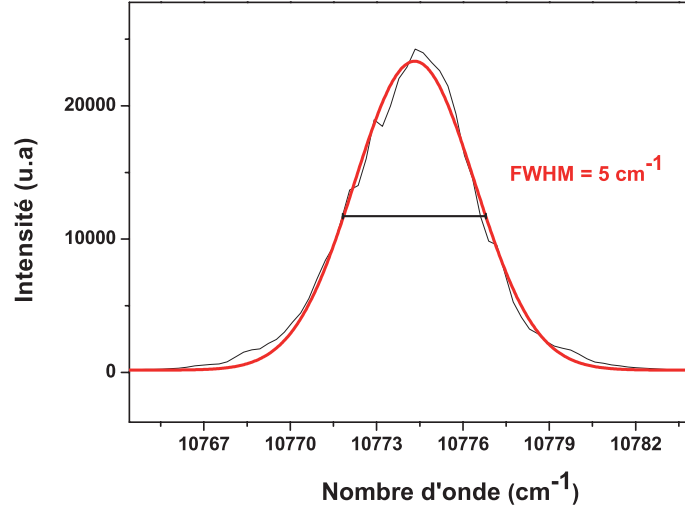


FIGURE 4.19 – Présentation du spectre du laser avant le microscope. Il présente une largeur spectrale obtenue par ajustement gaussien de 5 cm^{-1} , ce qui correspond à une durée d'impulsion limitée par transformée de Fourier de 3ps à mi-hauteur.

La largeur spectrale obtenue par ajustement gaussien est d'environ 5 cm^{-1} , ce qui correspond à une durée d'impulsion limitée par transformée de Fourier de 3ps. En revanche, dans nos expériences, le spectre rétrodiffusé à travers l'ensemble du microscope a malheureusement une forme cannelée, présentée sur la Figure 4.20.

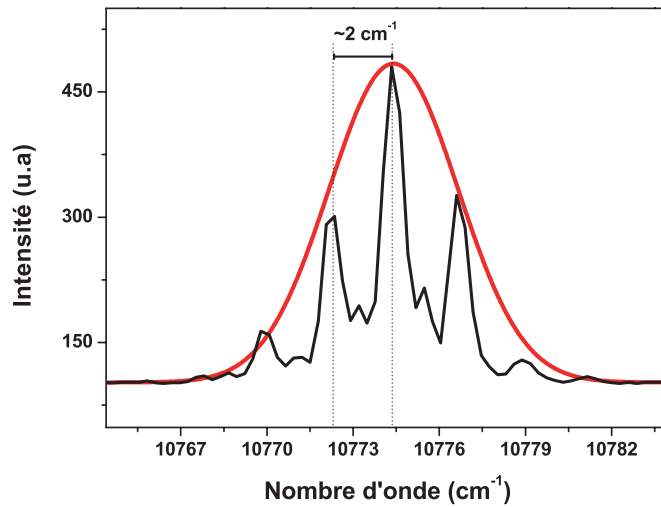


FIGURE 4.20 – Spectre typique mesuré à la sortie du microscope.

Ce spectre traduit très probablement la présence d'une double impulsion dans notre montage. L'écart constaté entre deux cannelures successives vaut environ 2cm^{-1} ($\sim 0,2\text{nm}$), ce qui correspond à un délai τ entre les deux impulsions d'environ 15ps. Compte tenu de la différence de chemin optique nd correspondante, nous pouvons penser que ces deux impulsions proviennent :

- Soit d'une réflexion sur la face arrière de l'échantillon ($n_{ech}=3,1$). L'épaisseur de l'échantillon vaut environ $500\mu\text{m}$, ce qui donne un délai τ de 10ps, en accord avec la mesure expérimentale. Cette hypothèse n'est pas très satisfaisante. En effet, compte tenu du fait que la réflexion sur la face arrière de l'échantillon est beaucoup moins bien focalisée sur celui-ci, le contraste des cannelures observées devrait être beaucoup moins bon.
- Soit d'une réflexion interne sur la face hémisphérique non traitée de la lentille solide à immersion accolée à l'échantillon ($n_{SIL}=2,1$). Le rayon de courbure de la lentille vaut 1mm environ, ce qui donne un délai τ de 15ps, en accord avec notre mesure expérimentale. Le facteur de réflexion air-lentille en intensité sous incidence normale est de l'ordre de 12%. Le contraste des cannelures devrait être de l'ordre de 35%, alors qu'expérimentalement, il avoisine les 90%.

Les deux hypothèses qui viennent d'être mentionnées ne sont pas parfaitement satisfaisantes. Dans les deux cas, la boîte ne "voit" pas la double impulsion : les interférences entre les deux impulsions se produisent à un autre endroit dans le microscope. Toutefois, si la double impulsion est créée ailleurs dans notre montage, il se peut que la boîte quantique y soit sensible. Les signaux mesurés ne semblent pas valider cette dernière hypothèse, mais des études plus complètes devront être menées sur ce problème.

De façon générale, nous considérerons que nous avons une incertitude sur le spectre mesuré expérimentalement. En particulier, avant son passage par le microscope, le laser est couplé dans une fibre optique monomode (d'un coeur de $6\mu\text{m}$ environ). Si le parallélisme des deux réseaux de l'étireur utilisé en amont pour introduire une dérive de fréquence linéaire sur l'impulsion n'est pas parfait, il peut introduire une dérive de fréquence spatiale. Ceci peut entraîner une réduction importante de la bande spectrale lors du couplage.

D'autre part, la dérive de fréquence introduite par l'étireur à réseaux a été évaluée expérimentalement en mesurant la distance D entre les deux réseaux. Elle est donc également soumise à notre incertitude sur cette mesure, qui est de l'ordre de quelques cm pour les grandes distances.

Par manque de temps, nous n'avons utilisé qu'un spectromètre pour définir les caractéristiques de notre laser. Il est clair qu'une mesure de la phase spectrale serait utile.

Dans nos simulations, la largeur spectrale $\Delta\sigma$ (exprimée en cm^{-1}) est donc un paramètre variable, que nous prendrons entre $3cm^{-1}$ et $6cm^{-1}$ (la largeur spectrale du laser avant son passage par le microscope valant typiquement $5cm^{-1}$, comme le montre la Figure 4.19). Le nombre d'onde central du laser σ (en cm^{-1} également), dont la valeur n'est pas connue de façon précise, pourra aussi être ajusté sur une faible plage.

Malgré ces incertitudes expérimentales, nous avons obtenu des résultats expérimentaux très satisfaisants, que nous présentons dans le paragraphe suivant. Nous chercherons à les interpréter au travers de simulations numériques du système réel à quatre niveaux, dont le principe de calcul est présenté dans le paragraphe 4.2.2.2.

4.3 Résultats expérimentaux : des oscillations de Rabi au passage adiabatique rapide

4.3.1 Protocole expérimental

Nous avons mis en évidence les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique rapide de l'exciton dans une boîte quantique. Le schéma de détection que nous utilisons est décrit dans le paragraphe 4.2.1.2. La boîte quantique étudiée est celle dont la cartographie d'émission est présentée sur la Figure 4.9 du paragraphe 4.2.1.1. L'excitation se fait à l'aide du laser Ti :Saphir impulsionnel à l'énergie de l'exciton X_0 ($E_{X0}=1.3356$ eV), et la luminescence est détectée à l'énergie du trion X^- ($E_{X-}=1.3295$ eV).

Pour observer les oscillations de Rabi, nous modifions la puissance du laser. Chaque valeur de puissance correspond en effet à une certaine fréquence de Rabi généralisée $|\vec{\Omega}_T|$. Cela signifie que, pour une puissance d'excitation fixée, l'interaction avec le champ conduit à une rotation du pseudo-spin associé au système à deux niveaux d'un angle Θ qui est :

$$\Theta = \int_0^\tau \Omega_T(t) dt \quad \text{avec} \quad \tau \geq \tau_0 \quad (4.53)$$

Le signe de l'angle Θ indique le sens de rotation du pseudo-spin.

Une impulsion π correspond à une rotation du pseudo-spin d'un angle π , ce qui conduit à une inversion totale de population.

Dans les expériences présentées par la suite, nous tracerons l'intensité de la photoluminescence en fonction de la "surface de l'impulsion" $\mathcal{S}$. Elle correspond à la valeur absolue de l'angle Θ défini précédemment en l'absence de désaccord ($\Delta=0$). Le paramètre $\mathcal{S}$ est indépendant de la dérive de fréquence introduite sur l'impulsion. Il vaut :

$$\mathcal{S} = \frac{1}{\hbar} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \mu \mathcal{A}(t) e^{i\omega_p t} dt \right| = \frac{\mu E_0 \tau_0 \sqrt{\pi}}{\hbar \sqrt{2 \ln 2}} \quad (4.54)$$

La puissance est mesurée à l'aide d'un détecteur placé dans la tête de microscope.

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre 2, une calibration préalable (et la prise en compte de la géométrie en champ sombre) permet de faire une correspondance précise entre la puissance mesurée par le détecteur et la puissance reçue par l'échantillon.

On démontre facilement que l'énergie de l'impulsion, à largeur spectrale constante, est proportionnelle au carré de la surface $\mathcal{S}$.

En effet, le signal mesuré par le détecteur est proportionnel à :

$$I_{det} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}(t)|^2 dt$$

Pour une impulsion d'excitation de profil temporel gaussien (expression A.17), limitée par transformée de Fourier, de durée totale à mi-hauteur τ_0 , on obtient donc :

$$I_{det} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_0^2 \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_0} \right)^2 \right] dt$$

Soit :

$$I_{det} \propto E_0^2 \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \tau_0$$

De même , pour une impulsion présentant une dérive de fréquence linéaire (expression A.21), de durée totale à mi-hauteur τ_p , l'intensité mesurée par le détecteur est :

$$I_{det} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_0^2 \frac{\tau_0}{\tau_p} \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right] dt$$

Soit :

$$I_{det} \propto E_0^2 \frac{\tau_0}{\tau_p} \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \tau_p$$

On a donc toujours, comme dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier (cf 4.55) :

$$I_{det} \propto E_0^2 \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \tau_0$$

L'intensité mesurée par le détecteur est donc indépendante de la dérive de fréquence

introduite sur l'impulsion. Elle peut s'exprimer en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ à l'aide de la relation 4.54 :

$$I_{det} \propto \frac{\hbar^2 \sqrt{\ln 2} \mathcal{S}^2}{\mu^2 \sqrt{\pi} \tau_0} \quad (4.55)$$

Nous porterons donc nos courbes expérimentales en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$, qui dépend uniquement du contenu spectral de l'impulsion (via τ_0). Elle s'exprime dans une unité arbitraire, qui est proportionnelle à la racine de l'intensité mesurée par le détecteur.

4.3.2 Présentation des résultats expérimentaux

4.3.2.1 Mise en évidence expérimentale des oscillations de Rabi et du passage adiabatique rapide de l'exciton

Nous avons étudié sur la Figure 4.21 le comportement des oscillations de Rabi en fonction de la tension de grille appliquée à l'échantillon.

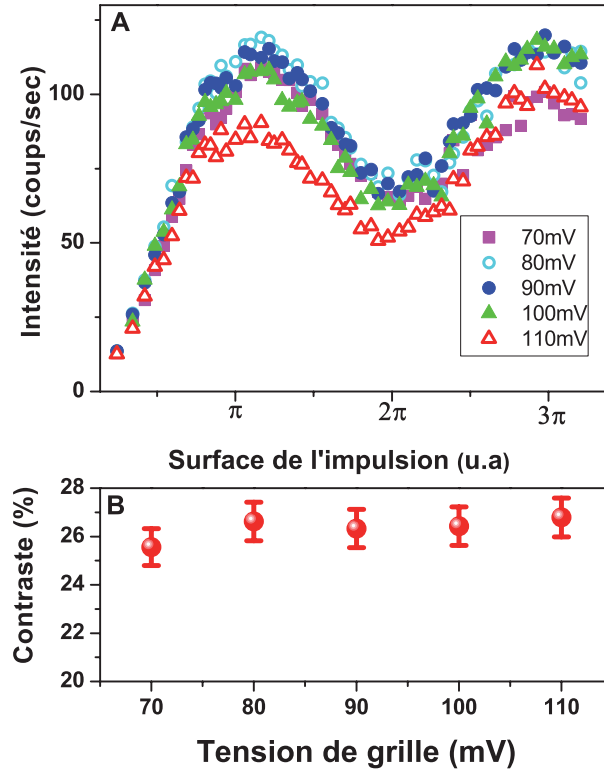


FIGURE 4.21 – (a) Oscillations de Rabi de la population de l'exciton X_0 en fonction de la surface de l'impulsion S pour différentes valeurs de la tension de grille V_g (allant de 0.07V à 0.11V), et (b) Contraste des oscillations de Rabi en fonction de V_g .

Nous constatons que sur la plage de tension étudiée (allant de 0.07V à 0.11V), le contraste des oscillations de la Figure 4.21 ne change pas de façon significative, ce qui signifie que le temps tunnel τ_{in} reste grand devant la largeur temporelle de l'impulsion (qui est d'environ 3ps). Ceci est en bon accord avec le temps tunnel τ_{in} évalué dans le paragraphe 4.2.1.2.

Le contraste des oscillations de Rabi vaut seulement $\sim 25\%$. Notons qu'expérimentalement, nous avons éliminé les ailes spectrales de l'impulsion d'excitation à l'aide d'un masque placé dans le plan de Fourier de la ligne $4f$ présentée dans le chapitre 2.

Nous avons ensuite mis en évidence *le passage adiabatique rapide de l'exciton*. Pour cela, nous avons introduit une dérive de fréquence linéaire négative sur l'impulsion d'excitation à l'aide de l'étireur à réseaux présenté dans le chapitre 2. Les oscillations de Rabi nous servent de *référence*. Nous porterons les courbes d'intensité détectée en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ sur un axe des abscisses commun. Ceci est légitime car, comme nous venons de le voir, l'intensité du signal détecté I_{det} est proportionnelle au carré de la surface de l'impulsion, qui dépend uniquement du contenu spectral de l'impulsion, indépendamment de la dérive de fréquence.

Nous présentons ce premier résultat sur la Figure 4.22. En modifiant la distance D qui sépare les deux réseaux de l'étireur de 6,5cm à 39cm, la dérive de fréquence $\phi^{(2)}$ de l'impulsion passe de $-6,5ps^2$ et de $-40ps^2$. De cette façon, nous observons successivement les oscillations de Rabi et le passage adiabatique rapide de l'exciton.

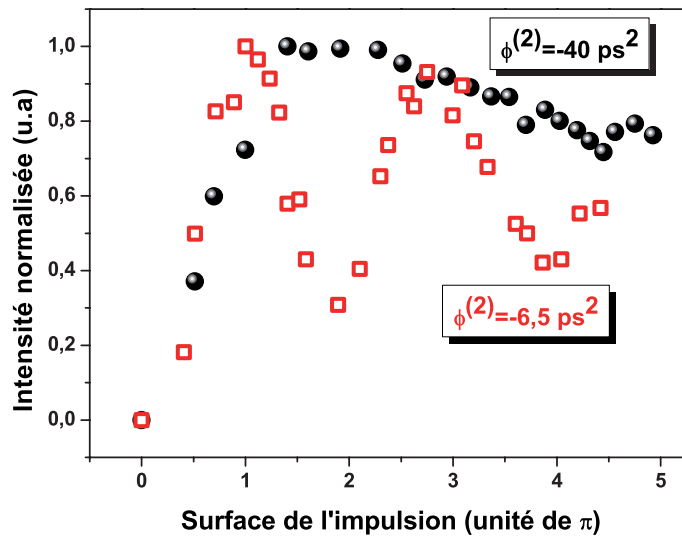


FIGURE 4.22 – Observation expérimentale des oscillations de Rabi ($\phi^{(2)} = -6,5ps^2$) et du passage adiabatique rapide de l'exciton ($\phi^{(2)} = -40ps^2$).

Ce résultat est très satisfaisant : il montre qu'il est possible de préparer un état d'exciton de façon robuste dans une boîte quantique unique. Il présente toutefois certaines limites : le contraste des oscillations de Rabi atteint seulement la valeur de 50%. D'autre part, le passage adiabatique chute légèrement avec la puissance d'excitation.

4.3.2.2 Etude avec la ligne 4f

Nous présentons ici des résultats préliminaires obtenus avec la ligne 4f. En déplaçant le masque situé dans le plan de Fourier de la ligne 4f (décrite dans le chapitre 2), nous dégagons différents comportements des oscillations de Rabi. Nous présentons ce résultat sur la Figure 4.23.

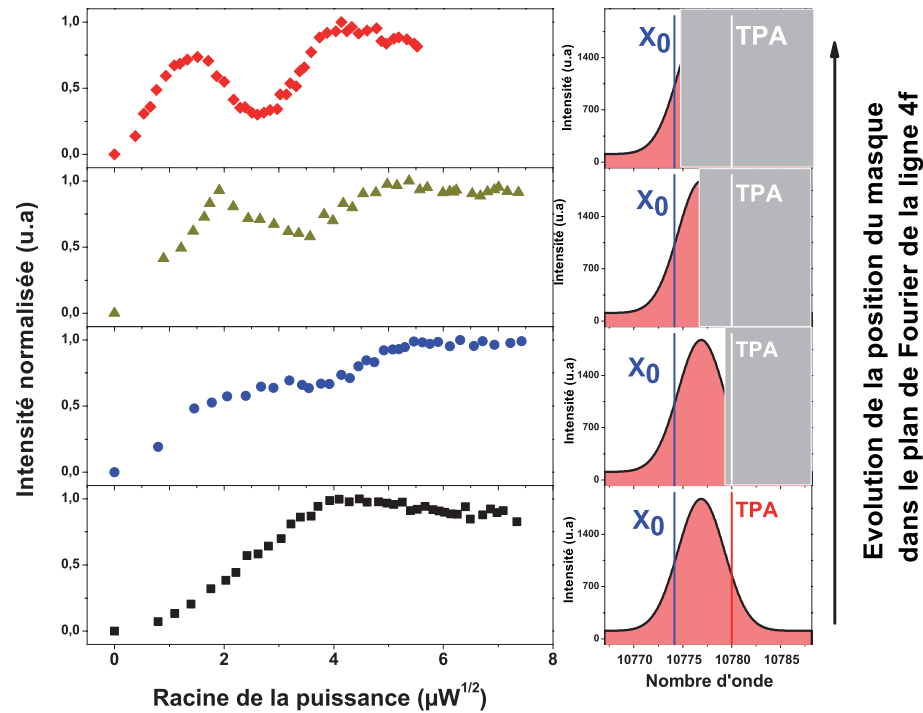


FIGURE 4.23 – Evolution des oscillations de Rabi pour différentes positions du masque dans le plan de Fourier de la ligne 4f. L'axe des x est directement la racine de la puissance mesurée, étant donné que le spectre change pour chaque mesure.

La Figure 4.23 montre que le contraste des oscillations diminue lorsqu'on élargit la zone passante à l'aide du masque placé dans le plan de Fourier. Le laser contient dans cette expérience des fréquences qui interviennent dans la transition à deux photons du bi-exciton (TPA : *Two-Photon Absorption*) ou dans les transitions vers le bi-exciton via les états d'exciton, comme le montre le spectre du laser présenté sur la Figure 4.23. Lorsqu'on déplace le masque pour élargir la zone passante, la génération du bi-exciton devient possible et son importance grandit progressivement. Cela explique probablement que la forme des oscillations se brouille.

Ces expériences ne sont pas encore bien comprises. Elles nécessiteraient une étude plus complète, que nous n'avons pas pu mener par manque de temps. Sur le plan théorique, il serait nécessaire de tenir compte dans notre modèle numérique de la

forme tronquée du spectre expérimental. Expérimentalement, il faudrait connaître exactement le spectre vu par la boîte. Une mesure de phase spectrale permettrait également de savoir s'il reste une dérive de fréquence résiduelle dans l'expérience. Les simulations numériques présentées par la suite permettent tout de même de dégager certaines tendances, mais il nous est impossible à l'heure actuelle de rendre parfaitement compte de tous les comportements observés.

4.3.2.3 Etude de la dérive de fréquence

Pour clore ces études expérimentales, nous avons modifié la dérive de fréquence introduite sur l'impulsion d'excitation en ajustant la distance D entre les deux réseaux de l'étireur (de $\phi^{(2)} = -3ps^2$ à $\phi^{(2)} = -29ps^2$) : on passe des oscillations de Rabi, dont le contraste chute progressivement, au passage adiabatique. Nous présentons ce résultat sur la Figure 4.24.

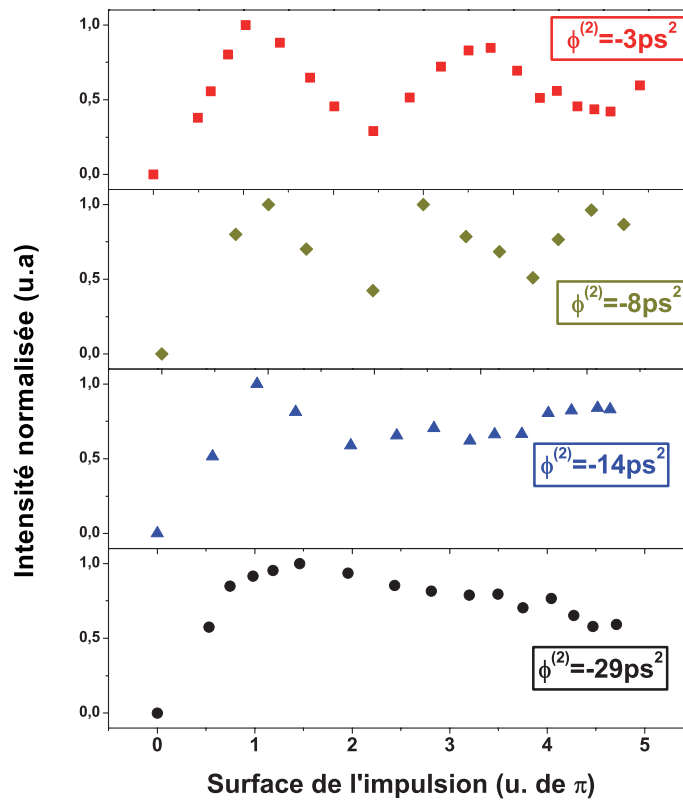


FIGURE 4.24 – Evolution de l'intensité de photoluminescence pour différentes dérives de fréquence : du passage adiabatique aux oscillations de Rabi.

4.3.3 Interprétations à l'aide des simulations numériques

Pour comprendre qualitativement nos résultats expérimentaux, nous avons réalisé des modélisations numériques : nous sommes partis d'une modélisation numérique simple d'un système à deux niveaux pour évoluer vers une modélisation plus complexe d'un système à quatre niveaux, qui traduit la réalité expérimentale.

Dans un premier temps, nous avons cherché à expliquer nos premiers résultats expérimentaux (Figure 4.22) en utilisant un simple modèle à deux niveaux. Nous traçons à chaque fois la population du trion, qui traduit la population d'exciton créée, en fonction de la surface de l'impulsion $\mathcal{S}$ (donnée ici en unité de π).

La Figure 4.25 présente le résultat obtenu avec les paramètres expérimentaux. Dans les deux situations étudiées (oscillations de Rabi et passage adiabatique), la largeur spectrale $\Delta\sigma$ vaut 5 cm^{-1} (largeur spectrale typique de notre laser avant le microscope), et le nombre d'onde central σ vaut environ $10774,5\text{ cm}^{-1}$, ce qui correspond à la fréquence de transition de l'exciton.

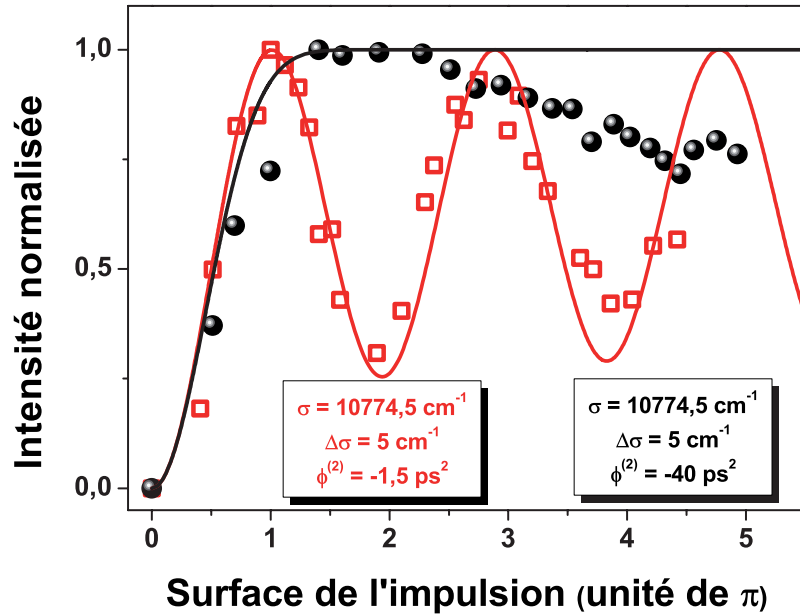


FIGURE 4.25 – Passage adiabatique ($\phi^{(2)} = -40\text{ ps}^2$) et Oscillations de Rabi ($\phi^{(2)} = -1,5\text{ ps}^2$) (Résultats expérimentaux et simulations numériques à 4 niveaux). Les paramètres utilisés pour la simulation numérique sont indiqués dans les deux configurations.

Nous pouvons constater que l'allure des oscillations de Rabi obtenues expérimentalement est bien reproduit en ajustant la dérive de fréquence linéaire $\phi^{(2)}$ à une valeur de $-1,5 \text{ ps}^2$. Compte tenu des incertitudes sur la mesure de la dérive de fréquence (qui est conditionnée à la mesure de la distance D entre les deux réseaux, d'une part, et dépend de la dérive de fréquence résiduelle en l'absence de l'étireur, d'autre part), il est raisonnable de modifier cette valeur par rapport à la mesure expérimentale de $-6,5 \text{ ps}^2$.

En revanche, ce modèle simple ne permet pas de rendre compte de la chute d'intensité du passage adiabatique ni de la chute de contraste légère des oscillations de Rabi avec la puissance. C'est pourquoi nous avons développé un modèle plus complet en considérant un système à quatre niveaux, qui semble mieux correspondre à notre situation expérimentale. Il est décrit de façon détaillée dans le paragraphe 4.2.2.2.

Avec cette simulation, nous avons étudié l'influence de différents paramètres de l'expérience, afin de quantifier du mieux que faire se peut leur rôle dans l'interaction. Nous avons étudié en particulier le rôle du nombre d'onde central du laser σ pour les oscillations de Rabi. L'objectif est ici de reproduire certains comportements "exotiques", qui sont observés expérimentalement sur la Figure 4.23. Nous avons également étudié la dérive de fréquence linéaire introduite sur l'impulsion $\phi^{(2)}$ afin de rendre compte du résultat expérimental de la Figure 4.24.

Nous présentons ici ces deux aspects.

4.3.3.1 Influence du nombre d'onde central σ de l'impulsion

Nous avons modifié le nombre d'onde central σ du laser du $10774,5 \text{ cm}^{-1}$ à 10780 cm^{-1} pour une largeur spectrale fixe de 5 cm^{-1} , en l'absence de dérive de fréquence $\phi^{(2)}$. Dans la plage de nombre d'onde choisie, on passe de la situation où la fréquence du laser est résonante avec la fréquence de la transition de l'exciton ($\sigma=10774,42 \text{ cm}^{-1}$) à celle où elle est résonante avec la fréquence qui correspond à l'excitation du bi-exciton à deux photons ($\sigma \sim 10780 \text{ cm}^{-1}$).

Lorsque le nombre d'onde central du laser σ augmente, on s'approche de l'énergie correspondant à l'excitation du bi-exciton à deux photons. Les simulations font alors apparaître différents comportements (Figure 4.26) :

- Pour un nombre d'onde σ compris entre $10774,5 \text{ cm}^{-1}$ et 10776 cm^{-1} , le contraste des oscillations de Rabi chute avec le nombre central du laser, conformément au fait que l'on s'éloigne petit à petit de la résonance avec la transition de l'exciton.
- Ensuite, pour un nombre d'onde σ compris entre 10777 cm^{-1} et $10778,5 \text{ cm}^{-1}$, des comportements "exotiques" apparaissent, avec en particulier pour $\sigma=10777 \text{ cm}^{-1}$, la seconde oscillation qui monte plus haut que la première.
- Enfin, pour un nombre d'onde σ compris entre 10778 cm^{-1} et 10780 cm^{-1} , des oscillations de Rabi de période double (avec un premier maximum pour une surface d'impulsion de 2π) se mettent en place. A partir de $\sigma=10779 \text{ cm}^{-1}$, on obtient des oscillations de Rabi "propres" dont l'intensité chute petit à petit.

Nous présentons le résultat de ces simulations sur la Figure 4.26 :

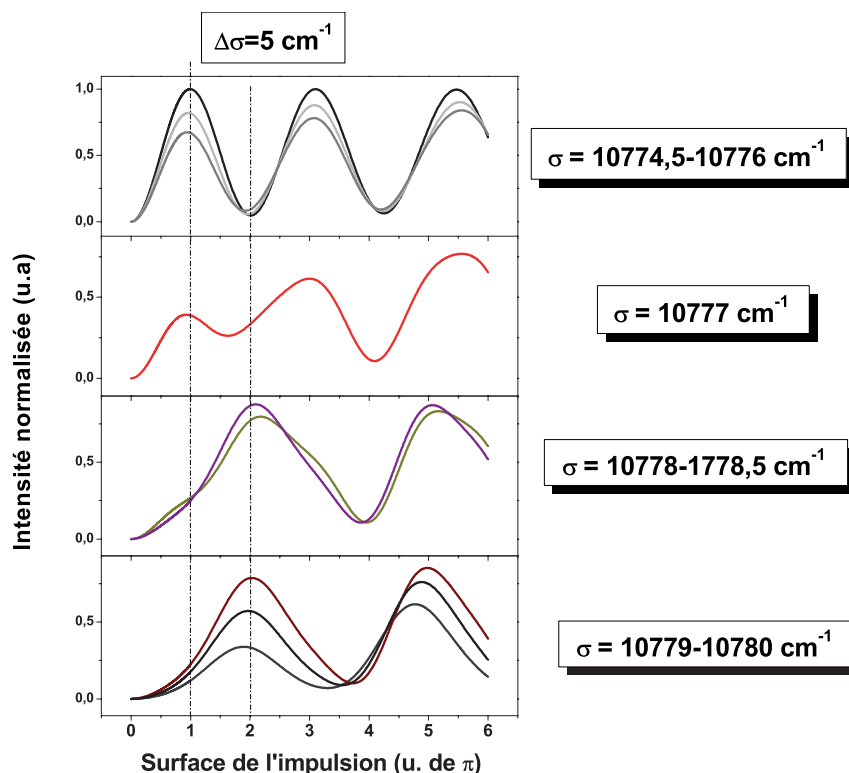


FIGURE 4.26 – *Influence du nombre d'onde central du laser : Simulations numériques des oscillations de Rabi pour une largeur spectrale σ de 5 cm^{-1} en l'absence de dérive de fréquence. Le nombre d'onde central du laser σ varie de $10774,5 \text{ cm}^{-1}$ à 10780 cm^{-1} . Quatre situations sont isolées, associées à des comportements distincts : de $10774,5 \text{ cm}^{-1}$ à 10776 cm^{-1} , le contraste des oscillations de Rabi chute progressivement au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la résonance avec la fréquence de transition de l'exciton. Ensuite, pour $\sigma=10777 \text{ cm}^{-1}$, les oscillations ont une forme particulière : la seconde oscillation dépasse la première. Enfin pour $\sigma=10778-10780 \text{ cm}^{-1}$ (les deux dernières courbes), des oscillations de Rabi de période double (avec un premier maximum pour une surface d'impulsion de 2π) se mettent en place.*

Dans les résultats préliminaires obtenus avec la ligne $4f$, il est probable que le bi-exciton contribue à la dynamique. On peut penser que les oscillations de Rabi du bi-exciton, plus lentes, comme le montrent les simulations de la Figure 4.26 (pour $\sigma=10779 \text{ cm}^{-1}-10780 \text{ cm}^{-1}$), viennent se superposer aux oscillations rapides de l'exciton. Ceci pourrait expliquer certains des comportements observés sur la Figure 4.23. Les oscillations de Rabi du bi-exciton ont par ailleurs déjà été observées expérimentalement [143] : leur période en fonction de la surface $\mathcal{S}$ vaut le double de celle des oscillations de Rabi de l'exciton.

4.3.3.2 Influence de la dérive de fréquence de l'impulsion

Nous retrouvons *qualitativement* à l'aide de la simulation numérique du système à quatre niveaux les tendances expérimentales observées lorsque l'on modifie la dérive de fréquence de l'impulsion. La dérive de fréquence est évaluée expérimentalement en mesurant la distance D entre les deux réseaux.

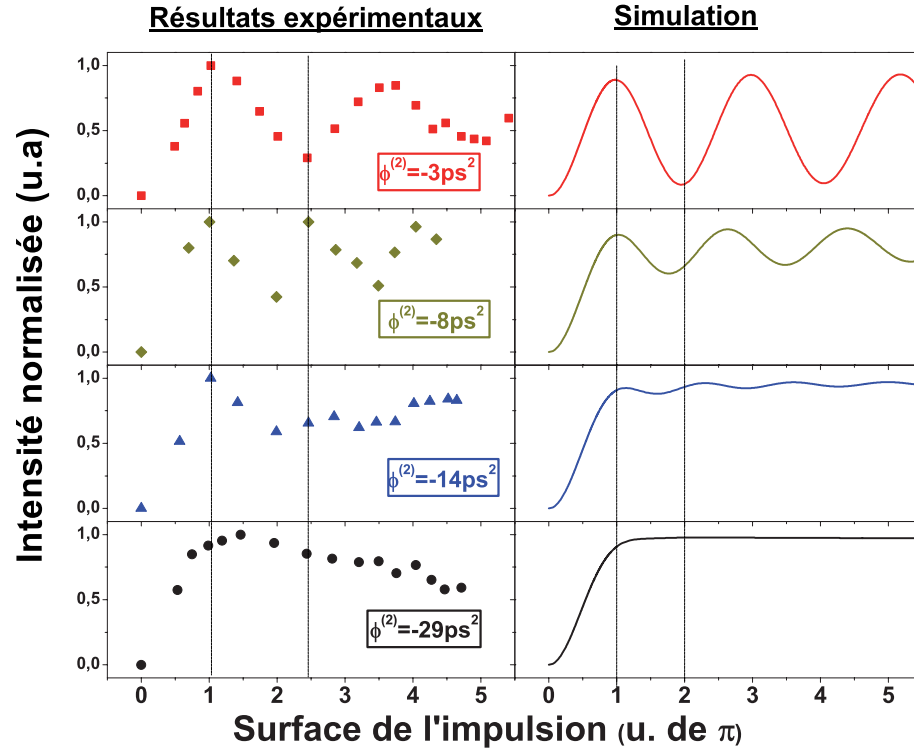


FIGURE 4.27 – Evolution qualitative de l'intensité de photoluminescence pour différentes dérives de fréquence linéaires : du passage adiabatique aux oscillations de Rabi. Ces résultats sont obtenus à partir de la simulation numérique.

On peut remarquer que la période des oscillations diminue lorsque l'on passe progressivement des oscillations de Rabi au passage adiabatique (ceci à la fois expérimentalement et numériquement). Cela peut s'expliquer qualitativement en remarquant que la norme de la fréquence de Rabi généralisé $|\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}|$ augmente petit à petit avec la dérive de fréquence.

4.3.3.3 Pistes d'interprétations

Les simulations numériques permettent de rendre compte de certains comportements observés expérimentalement. Toutefois, notre modèle est insuffisant : en particulier, il ne permet pas de rendre compte de la chute d'intensité du passage adiabatique avec la puissance. Cela pourrait s'expliquer par le fait que certains phénomènes de déphasage dépendants de l'intensité du laser ne sont pas pris en compte dans notre modèle.

Il serait intéressant par exemple de considérer l'interaction de l'électron avec les phonons acoustiques : la force de cette interaction dépend de la puissance du laser d'excitation. Cela a été observé et modélisé tout récemment dans des expériences sur boîte quantique unique où le signal est mesuré électriquement [144, 145] : la présence des phonons acoustiques se traduit dans ce cas par un amortissement des oscillations de Rabi.

Dans le modèle de l'atome habillé de la Figure 4.2, ce type de processus de déphasage permet de "passer" d'une branche à l'autre, ce qui revient à transférer une partie de la population vers l'état fondamental et pourrait expliquer nos observations expérimentales. Une des difficultés à surmonter est que, dans le cas du passage adiabatique, ce phénomène dépend à la fois du temps et de la puissance, ce qui rend la modélisation plus complexe.

Le bi-exciton pourrait avoir une influence dans ce processus, augmentant le nombre d'états habillés, et donc le nombre de possibilités de couplage par phonons.

Nous chercherons dans les mois à venir à améliorer notre modèle théorique dans ce sens.

4.4 Conclusion et perspectives

Nous avons présenté les oscillations de Rabi puis le passage adiabatique rapide de l'exciton dans une boîte quantique unique. Ces expériences confirment l'analogie qui est souvent faite entre une boîte quantique et un atome unique. Elles montrent également les limites de cette analogie. L'exciton piégé dans une boîte quantique interagit en effet avec son environnement (par l'intermédiaire des phonons par exemple). De plus, il est difficile d'isoler parfaitement un système à deux niveaux. Ces limites peuvent expliquer la faible valeur du contraste des oscillations de Rabi (qui atteint la valeur maximale de 50% sur la Figure 4.22), ainsi que la chute d'intensité du passage adiabatique avec la puissance du laser d'excitation observée expérimentalement.

Pour repousser ces limites, nous pourrions travailler avec une excitation polarisée circulairement sous champ magnétique longitudinal, ou dans des systèmes où l'exciton et le bi-exciton sont bien séparés en énergie, par exemple dans des matériaux de plus grand gap, comme les semiconducteurs II-VI [146].

Les perspectives de ce travail sont nombreuses. Le passage adiabatique rapide pourrait être utilisé par exemple dans les expériences d'interférence à un photon [147]. On pourrait également envisager de réaliser un passage adiabatique rapide sur le bi-exciton, afin de préparer le système de façon fidèle dans cet état, comme cela est fait dans les molécules pour l'ascension des échelles vibrationnelles [128]. De cette façon, des sources de paires de photons intriqués dont la génération serait contrôlée et le rendement optimisé pourraient être développées.

De façon générale, dans toutes les expériences où une impulsion π est utilisée pour maximiser une population, le passage adiabatique, plus robuste, présente un grand intérêt. C'est le cas par exemple des expériences réalisées dans un ensemble de boîtes pour les électrons [148] ou les trous [149].

Enfin, la capacité à générer une population de façon robuste est une condition nécessaire à la manipulation d'un "Q-bit" de boîte quantique, que ce soit dans des systèmes de boîtes couplées par des électrodes [150, 151], ou dans une boîte quantique sous champ magnétique transverse [152, 153]. Dans ces deux derniers cas, il y a formation d'un système en Λ , dans lequel l'utilisation des techniques de STIRAP (*Stimulated Raman Adiabatic Passage*) [126, 154, 155] peut être envisagée.

Conclusion

Nous avons exploré dans ce manuscrit différents aspects de l'interaction lumière-matière, à travers des expériences de spectroscopie de luminescence stationnaire sur boîte quantique unique.

Dans le chapitre 3, nous nous sommes intéressés aux propriétés de spin et aux effets nucléaires. A travers des études complètes d'excitation de la photoluminescence et des études en puissance, nous avons montré qu'il était possible de contrôler optiquement les états propres de l'exciton neutre en l'absence de champ magnétique externe, sous excitation non résonante. Pour cela, nous avons utilisé un montage de spectroscopie de luminescence résolu en polarisation à l'excitation et à la détection. Un champ magnétique nucléaire ajustable avec la polarisation ou la puissance du laser d'excitation, est créé au sein de la boîte par le biais de l'interaction hyperfine, et agit sur l'exciton comme le ferait un champ magnétique externe. Ce phénomène original montre l'importance des fluctuations de charge de la boîte et des effets nucléaires sur l'électron dans une boîte quantique.

Dans le chapitre 4, nous avons présenté des expériences réalisées en régime cohérent, c'est-à-dire avec des impulsions plus courtes que le temps de déphasage du système. Ces expériences sont difficiles à réaliser dans une boîte quantique unique car elles nécessitent d'exciter et de détecter le signal de luminescence à résonance sur le niveau fondamental de la boîte. Ces difficultés nous ont conduits à développer de nombreux outils expérimentaux et à implémenter un nouveau schéma de détection, toutes modifications qui ont conditionné le succès de nos expériences. Nous avons mis en évidence les oscillations de Rabi puis, pour la première fois, le passage adiabatique rapide de l'exciton dans une boîte quantique unique. En excitant le système avec des impulsions à dérive de fréquence, nous avons démontré qu'il était

possible de générer une population d'exciton de façon robuste et avec une grande fidélité, ouvrant la voie aux techniques de STIRAP (*Stimulated Raman Adiabatic Passage*) [126, 154].

Enfin, si ces expériences sont une réussite, nos résultats expérimentaux montrent qu'il est difficile d'isoler parfaitement un système à deux niveaux dans une boîte quantique. De plus, l'interaction avec les phonons acoustiques joue probablement un rôle important dans nos expériences [144]. Elle limite la fidélité de la préparation dans un état quantique donné, et devra être prise en compte dans un modèle théorique ultérieur. Ces deux aspects mettent en avant les limites de l'analogie entre la boîte quantique et l'atome unique, montrant l'importance de l'environnement dans les systèmes en phase condensée.

Ces premiers résultats ouvrent la voie à de plus amples travaux tant au niveau théorique qu'expérimental. Différents développements expérimentaux peuvent être envisagés, axés sur un meilleur contrôle du spectre ou de l'état de polarisation du laser. Au niveau théorique, les simulations gagneraient à tenir compte de l'interaction avec les phonons.

Ce travail permet enfin d'envisager la réalisation de nouvelles expériences de manipulations cohérentes en phase condensée. Une première idée serait de contrôler le spin d'un électron (ou d'un trou) dans une boîte quantique chargée [153]. Une autre piste est d'utiliser des outils de façonnages qui permettront d'intervenir sur la phase de l'impulsion. Grâce à cela, nous pourrions par exemple optimiser l'absorption à deux photons d'états bi-excitoniques de boîte quantique unique, en réalisant le schéma de contrôle proposé par Y.Silberberg [156] ou par B.Chatel et al. [78].

Annexe A

Propagation dans un milieu dispersif

A.1 Etude de la traversée d'un milieu optique dispersif par une impulsion ultracourte

Nous allons étudier l'effet de la traversée d'un milieu optique dispersif (milieu matériel, étireur, compresseur) sur une impulsion ultracourte. De par leur grande largeur spectrale, les impulsions ultracourtes sont à l'origine d'un certain nombre de phénomènes conduisant à une déformation de leur profil temporel.

En particulier, les différentes composantes spectrales de l'impulsion ne se propagent pas à la même vitesse et parcourent donc des chemins optiques différents dans le système dispersif. C'est la dispersion de vitesse de groupe (GDD pour Group Delay Dispersion). Ceci conduit à l'allongement de l'impulsion à la sortie du disperseur. Nous introduirons ici les notions relatives aux impulsions à dérive de fréquence.

Soit une impulsion lumineuse polarisée linéairement se propageant dans la direction z . Elle est caractérisée, dans le vide, par le champ électrique complexe :

$$\mathcal{E}(z, t) = A(z, t) \exp i(k_0 z - \omega_p t) \quad (\text{A.1})$$

où $k_0 = k(\omega_p)$ est le module du vecteur d'onde à la pulsation centrale. Son spectre complexe s'écrit $\tilde{\mathcal{E}}(z, \omega)$.

En $z=0$, cette impulsion pénètre dans un élément dispersif de longueur L . La traversée de ce système introduit un déphasage $\phi(\omega)$. Pour un milieu matériel dispersif non absorbant, caractérisé par un indice de réfraction $n(\omega)$ réel et dépendant de la fréquence, on a :

$$\phi(\omega) = \frac{n(\omega)\omega L}{c} \quad (\text{A.2})$$

À la sortie, l'impulsion a un spectre complexe :

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(0, \omega) \cdot \exp(i\phi(\omega)) \quad (\text{A.3})$$

Et un champ électrique :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\mathcal{E}}(0, \omega) \exp(i\phi(\omega)) \exp(-i\omega t) d\omega \quad (\text{A.4})$$

Loin des bandes d'absorption du milieu, $\phi(\omega)$ varie lentement. Si la largeur spectrale $\Delta\omega_p$ de l'impulsion est petite devant sa fréquence centrale ω_0 , on peut développer $\phi(\omega)$ en série de Taylor au voisinage de ω_0 :

$$\phi(\Omega) = \phi_0 + \phi_0^{(1)}\Omega + \frac{1}{2}\phi_0^{(2)}\Omega^2 + \dots \quad (\text{A.5})$$

$$\text{où } \Omega = (\omega - \omega_p), \phi_0 = \phi(\omega_p) \text{ et } \phi_0^{(n)} = \left(\frac{d^n \phi}{d\omega^n} \right)_{\omega_p} \quad (\text{A.6})$$

Nous nous restreignons ici à l'ordre deux. L'effet des termes d'ordre supérieur est étudié dans la thèse de G.Chériaux [79].

Nous considérons une impulsion de profil temporel gaussien, limitée par transformée de Fourier. Sa durée totale à mi-hauteur en intensité est notée τ_0 . Elle a pour champ électrique :

$$\mathcal{E}_{in}(t) = \mathcal{E}(z = 0, t) = E_0 \exp(-\Gamma_0 t^2) \exp(-i\omega_p t) \quad (\text{A.7})$$

$$\text{où } \Gamma_0 = \frac{1}{T_0^2} = \frac{2 \ln 2}{\tau_0^2} \quad (\text{A.8})$$

T_0 désigne la demi-largeur à $\frac{1}{e}$ du champ.

Une telle impulsion a un spectre complexe :

$$\tilde{\mathcal{E}}_{in}(\Omega) = E_0 \cdot \sqrt{\frac{\pi}{\Gamma_0}} \exp\left(-\frac{\Omega^2}{4\Gamma_0}\right) \quad (\text{A.9})$$

Après la traversée d'un élément dispersif et en se restreignant à l'ordre deux, son spectre devient :

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(\Omega) = E_0 \cdot \sqrt{\frac{\pi}{\Gamma_0}} \exp\left(-\frac{\Omega^2}{4\Gamma_0}\right) \cdot \exp[i(\phi_0 + \phi_0^{(1)}\Omega)] \quad (\text{A.10})$$

où Γ est donné par :

$$\frac{1}{\Gamma} = \frac{1}{\Gamma_0} - 2i\phi_0^{(2)} \quad (\text{A.11})$$

Le champ électrique de l'impulsion à la sortie du milieu dispersif est finalement :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = E_0 \cdot \sqrt{\frac{\Gamma}{\Gamma_0}} \exp[-\Gamma(t - \phi_0^{(1)})^2] \exp[-i(\omega_p t - \phi_0)] \quad (\text{A.12})$$

Nous posons alors :

$$\Gamma = \frac{1}{T_P^2} + i\alpha \quad (\text{A.13})$$

avec, par identification :

$$T_P = T_0 \sqrt{1 + \left(\frac{2\phi_0^{(2)}}{T_0^2} \right)^2} \quad \text{et} \quad \alpha = \frac{2\phi_0^{(2)}}{[T_0^4 + (2\phi_0^{(2)})^2]} \quad (\text{A.14})$$

On peut alors écrire le rapport $\frac{\Gamma}{\Gamma_0}$ sous la forme :

$$\frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{T_0}{T_P} \exp(-i\varphi_0) \quad \text{avec} \quad \tan \varphi_0 = -\alpha T_P^2 = -\frac{2\phi_0^{(2)}}{T_0^2} \quad (\text{A.15})$$

Grâce à ces expressions, nous pouvons réécrire le champ électrique complexe de l'impulsion à la sortie du milieu dispersif :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = E_0 \cdot \sqrt{\frac{T_0}{T_P}} \exp - \left[\frac{(t - \phi_0^{(1)})}{T_P} \right]^2 * \exp(-i[\omega_p t + \alpha(t - \phi_0^{(1)})^2 - \phi_0 + \frac{\varphi_0}{2}]) \quad (\text{A.16})$$

Outre le terme de phase quadratique $\phi_0^{(2)}$, on voit apparaître dans cette expression un terme de phase constant ϕ_0 , qui correspond au déphasage de l'onde, et un terme de phase linéaire $\phi_0^{(1)}$, qui décrit le décalage temporel de l'impulsion dû à la propagation de l'enveloppe à la vitesse de groupe $v_g(\omega_p)$.

A.2 Notations du chapitre 4

Dans le chapitre 4, nous présentons des expériences réalisées en excitant la boîte quantique à l'aide d'impulsions ultracourtes, qui peuvent être limitées TF (produites à l'aide d'un laser Ti :Sa impulsional ps), ou à dérive de fréquence (produites à

l'aide de l'étireur à réseaux). Dans les deux cas, afin de faire une correspondance directe avec nos données expérimentales, nous exprimerons le champ électrique de l'impulsion en fonction de la durée totale à mi-hauteur de l'intensité temporelle.

A.2.1 Cas d'une impulsion limitée TF

Pour observer les oscillations de Rabi de l'exciton dans le chapitre 4, nous utilisons des impulsions de profil temporel gaussien, limitées par transformée de Fourier. Le champ électrique complexe d'une telle impulsion s'écrit en fonction de la durée totale à mi-hauteur de l'intensité temporelle que nous notons τ_0 :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = E_0 \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_0} \right)^2 \right] \exp(-i\omega_p t) \quad (\text{A.17})$$

Avec :

$$\tau_0 = \sqrt{2 \ln 2} T_0 \quad (\text{A.18})$$

Dans le cas d'une impulsion limitée TF, de profil temporel gaussien, le lien entre la durée τ_0 de l'impulsion et la largeur totale à mi-hauteur en intensité du spectre mesuré $\Delta\omega_0$ (donnée expérimentale) est :

$$\Delta\omega_0 \tau_0 = 4 \ln 2 \quad (\text{A.19})$$

A.2.2 Cas d'une impulsion à dérive de fréquence

Pour observer le passage adiabatique rapide de l'exciton dans le chapitre 4, nous utilisons des impulsions à dérive de fréquence (*impulsions chirpées*), produites à l'aide d'un étireur à réseaux. Pour exprimer son champ électrique complexe, nous utilisons l'expression A.16 établie précédemment, en éliminant les termes de phase ϕ_0 et $\phi_0^{(1)}$, qui n'ont pas d'importance pour les effets auxquels nous nous intéressons dans le chapitre 4 (oscillations de Rabi et passage adiabatique).

Nous considérons donc que l'étireur à réseaux introduit uniquement une phase quadratique $\phi_0^{(2)}$ sur l'impulsion. Son champ électrique s'écrit donc :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = E_0 \sqrt{\frac{T_0}{T_P}} \exp - \left(\frac{t}{T_P} \right)^2 \exp(-i\alpha t^2) \exp(-i\omega_p t) \quad (\text{A.20})$$

Nous écrivons ce champ en fonction de la durée totale à mi-hauteur de l'intensité temporelle notée τ_p :

$$\mathcal{E}_{out}(t) = E_0 \cdot \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_p}} \exp \left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p} \right)^2 \right] \exp(-i\alpha t^2) \exp(-i\omega_p t) \quad (\text{A.21})$$

Avec :

$$\tau_p = \sqrt{2 \ln 2} T_P \quad (\text{A.22})$$

Cette expression montre que l'étireur à réseaux a pour principal effet d'allonger la durée de l'impulsion de τ_0 à τ_p :

$$\tau_p = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \phi_0^{(2)}}{\tau_0^2} \right)^2} \quad (\text{A.23})$$

De plus, il introduit une dérive de fréquence linéaire, caractérisée par une fréquence instantanée $\omega(t)$ qui varie linéairement au cours de l'impulsion :

$$\omega(t) = \omega_p + 2\alpha \cdot t \quad (\text{A.24})$$

Où α est défini par :

$$\alpha = \frac{8(\ln 2)^2 \phi_0^{(2)}}{[\tau_0^4 + (4 \ln 2 \phi_0^{(2)})^2]} \quad (\text{A.25})$$

Le signe de la dérive de fréquence est celui du terme de dispersion quadratique $\phi_0^{(2)}$. D'autre part, plus l'impulsion à l'entrée de l'élément dispersif est longue, plus l'effet de la dispersion quadratique est négligeable ($\tau_p \sim \tau_0$).

Si l'impulsion est très étirée (c'est-à-dire pour $|\phi_0^{(2)}| \gg \tau_0^2$), nous avons :

$$\tau_p \simeq \frac{4 \ln 2 |\phi_0^{(2)}|}{\tau_0} \quad (\text{A.26})$$

Et :

$$\omega(t) \simeq \omega_p + \frac{1}{\phi_0^{(2)}} t \quad (\text{A.27})$$

La durée de l'impulsion croît donc linéairement avec la dispersion quadratique.

Annexe B

Procédure de fit : Mesure indirecte
du déplacement Overhauser de
l'exciton neutre

Nous montrons ici que notre procédure de fit permet d'accéder au déplacement Overhauser δ_n de l'exciton neutre X_0 . Ce dernier traduit la présence d'un champ nucléaire effectif dans la boîte qui apparaît sous excitation polarisée circulairement. Pour l'évaluer expérimentalement, nous mesurons simplement l'écart énergétique entre les composantes de luminescence co- et contra-polarisées σ^+ et σ^- .

Deux cas se présentent :

- En l'absence de champ magnétique externe (ou d'un champ nucléaire effectif présent au sein de la boîte qui jouerait ce rôle), les états propres de l'exciton neutre $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont polarisés linéairement selon les directions cristallographiques $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$. Ils sont séparés de l'énergie d'échange anisotrope δ_1 [113].

Lorsque la luminescence est détectée en sélectionnant une polarisation circulaire donnée, on mesure donc théoriquement une double lorentzienne dont les pics correspondent aux deux transitions $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Ils sont d'égale intensité et séparés en énergie de $(E_X - E_Y) = \delta_1$ (δ_1 étant l'énergie d'échange anisotrope).

La forme du spectre que nous détectons à l'aide du monochromateur s'écrit donc en fonction de l'énergie :

$$f_{\sigma\pm}(E) = \frac{a_0\gamma}{\pi} \left(\frac{1}{\gamma^2 + (E - E_X)^2} + \frac{1}{\gamma^2 + (E - E_Y)^2} \right) \quad (\text{B.1})$$

γ est la largeur spectrale minimale d'une Lorentzienne donnée par le monochromateur de la chaîne de détection. Nous évaluons expérimentalement à $140\mu\text{eV}$.

Du fait du manque de résolution de notre monochromateur, il n'est pas possible de résoudre cette bi-lorentzienne. La largeur γ dépasse en effet largement la largeur spectrale typique d'une transition de boîte quantique [64, 63] et l'énergie d'échange anisotrope δ_1 qui est de l'ordre de $30\mu\text{eV}$ dans notre système. On peut approcher la raie spectrale par une lorentzienne simple, identique en polarisation σ^+ et σ^- .

- En revanche, en présence d'un champ nucléaire effectif selon l'axe (Oz), les états de l'exciton neutre se circularisent [113]. Les nouveaux états propres, d'énergie respective E_+ et E_- , sont des combinaisons linéaires des états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ (ou $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$).

Ils sont séparés d'une énergie :

$$\Delta = E_+ - E_- = \sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2} \quad (\text{B.2})$$

où δ_n est le déplacement Overhauser. Il vaut :

$$\delta_n = g_e \mu_B B_N \quad (\text{B.3})$$

Cette fois-ci, les deux pics de la double lorentzienne détectée en polarisation circulaire auront une intensité différente. Comme précédemment expliqué, notre système de détection ne permet pas de résoudre cette bi-lorentzienne. Cependant, on peut l'approcher par une lorentzienne simple dont la position du pic central variera en fonction du poids respectif des deux pics de la double lorentzienne. Notre procédure de fit consiste à ajuster par une lorentzienne les deux spectres détectés en polarisation σ^+ et σ^- . Les calculs présentés ici montrent que cela permet bien d'aboutir à la mesure du déplacement Overhauser.

Nous nous intéresserons dans cette partie au cas où l'énergie d'échange anisotrope δ_1 et le déplacement Overhauser δ_n sont du même ordre de grandeur. Cela correspond aux conditions expérimentales du chapitre 3. Dans ce cas, les nouveaux états propres de l'exciton neutre X_0 sont elliptiques.

Ils s'écrivent :

$$|+\rangle = \alpha|X\rangle + i\beta|Y\rangle = \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}}|+1\rangle + \frac{\alpha - \beta}{\sqrt{2}}|-1\rangle \quad (\text{B.4})$$

Et :

$$|-\rangle = \beta|X\rangle - i\alpha|Y\rangle = \frac{\beta - \alpha}{\sqrt{2}}|+1\rangle + \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}}|-1\rangle \quad (\text{B.5})$$

α and β sont deux coefficient normalisés ($\alpha^2 + \beta^2 = 1$) qui dépendent uniquement de δ_1 and δ_n .

Ils valent :

$$\alpha = \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 - \delta_1 \delta_n \sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} + \left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 + \delta_1 \delta_n \sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (\text{B.6})$$

Et :

$$\beta = \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 - \delta_1 \delta_n \sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} - \left(\frac{\delta_1^2 + \delta_n^2 + \delta_1 \delta_n \sqrt{1 + \frac{\delta_n^2}{\delta_1^2}}}{\delta_1^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (\text{B.7})$$

Le spectre détecté à l'aide du monochromateur a la forme d'une double lorentzienne dont les deux pics n'ont pas la même intensité, et sont centrés en $E_{\pm} = E_0 \pm \frac{\Delta}{2}$. Il s'écrit, pour une polarisation de détection σ^+ :

$$f_{\sigma^+}(E) = \frac{a_0 \gamma}{\pi} \left(\frac{1 + \epsilon}{\gamma^2 + (E - E_0 + \frac{\Delta}{2})^2} + \frac{1 - \epsilon}{\gamma^2 + (E - E_0 - \frac{\Delta}{2})^2} \right) \quad (\text{B.8})$$

Et, pour une polarisation de détection σ^- :

$$f_{\sigma^-}(E) = \frac{a_0 \gamma}{\pi} \left(\frac{1 - \epsilon}{\gamma^2 + (E - E_0 + \frac{\Delta}{2})^2} + \frac{1 + \epsilon}{\gamma^2 + (E - E_0 - \frac{\Delta}{2})^2} \right) \quad (\text{B.9})$$

ϵ représente la déviation entre les deux forces d'oscillateur $a_0(1 - \epsilon)$ et $a_0(1 + \epsilon)$ des deux transitions.

De plus :

$$E_{\pm} = E_0 \pm \frac{\Delta}{2}. \quad (\text{B.10})$$

Chacune de ces expressions peut se simplifier car $\gamma \gg \Delta$. Un développement limité au second ordre donne :

$$\frac{1}{\gamma^2 + (x \pm \Delta x)^2} = \frac{1}{x^2 + \gamma^2} \mp \frac{2x\Delta x}{(x^2 + \gamma^2)^2} + O[\Delta x]^2 \quad (\text{B.11})$$

$$\text{Avec } x = E - E_0 \text{ et } \Delta x = \frac{\Delta}{2} \quad (\text{B.12})$$

Nous obtenons les expressions approchées suivantes :

$$f_{\sigma+}(E) \simeq \frac{2a_0\gamma}{\pi} \frac{1}{\gamma^2 + (E - E_0)^2} \left(1 - \frac{\epsilon(E - E_0) \Delta}{\gamma^2 + (E - E_0)^2} \right) \quad (\text{B.13})$$

$$f_{\sigma-}(E) \simeq \frac{2a_0\gamma}{\pi} \frac{1}{\gamma^2 + (E - E_0)^2} \left(1 + \frac{\epsilon(E - E_0) \Delta}{\gamma^2 + (E - E_0)^2} \right) \quad (\text{B.14})$$

Comme $\frac{\Delta}{\gamma} \ll 1$, nous avons :

$$\frac{\epsilon(E - E_0) \Delta}{\gamma^2 + (E - E_0)^2} \ll 1. \quad (\text{B.15})$$

Les équations B.13 et B.14 montrent que les doubles lorentziennes théoriques peuvent être approchées par deux Lorentziennes simples accompagnées d'un terme correctif faible.

Nous calculons alors le maximum des deux spectres approchés $f_{\sigma+}$ et $f_{\sigma-}$, que nous noterons respectivement E_p et E_m . Cela donne :

$$E_p - E_0 \simeq -\epsilon. \frac{\Delta}{2} \quad (\text{B.16})$$

Et :

$$E_m - E_0 \simeq \epsilon. \frac{\Delta}{2} \quad (\text{B.17})$$

La différence d'énergie entre les deux Lorentziennes détectées en polarisation σ^+ et σ^- est donc :

$$E_p - E_m \simeq \epsilon.(E_+ - E_-) = \epsilon.\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2} \quad (\text{B.18})$$

Dans le cas d'une excitation polarisée circulairement σ^+ , on crée majoritairement l'exciton brillant $|+1\rangle$. D'après les relations B.4 et B.5, tous les photons de l'état $|+1\rangle$ sont détectés avec une probabilité proportionnelle à $\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}}\right)^2$ à l'énergie E_+ et $\left(\frac{\beta-\alpha}{\sqrt{2}}\right)^2$ à l'énergie E_- . ϵ s'écrit donc :

$$\epsilon = \frac{\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}}\right)^2 - \left(\frac{\beta-\alpha}{\sqrt{2}}\right)^2}{\left(\frac{\alpha+\beta}{\sqrt{2}}\right)^2 + \left(\frac{\beta-\alpha}{\sqrt{2}}\right)^2} = 2\alpha\beta \quad (\text{B.19})$$

Ce qui donne en utilisant la définition des paramètres α et β donnée en B.6 et B.7 :

$$\epsilon = \frac{\delta_n}{\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2}} \quad (\text{B.20})$$

En conséquence, la différence d'énergie entre la Lorentzienne détectée en polarisation σ^+ et la Lorentzienne détectée en polarisation σ^- est simplement :

$$E_p - E_m \simeq \epsilon(E_+ - E_-) = \epsilon\sqrt{\delta_1^2 + \delta_n^2} = \delta_n \quad (\text{B.21})$$

Ceci démontre que notre procédure de fit est valable : elle permet bien d'extraire le déplacement Overhauser de l'exciton neutre X_0 en déconvoluant par une Lorentzienne la transition détectée en polarisation σ^+ puis en polarisation σ^- .

Annexe C

Formalisme de pseudo-spin effectif :
visualisation intuitive des oscillations
de Rabi et du passage adiabatique
rapide

On peut associer un spin effectif $\vec{S}$ à notre système à deux niveaux (qui se compose du niveau fondamental de boîte quantique $|0\rangle$ et de l'exciton $|X_0\rangle$). Cette approche est analogue à celle que nous développons dans le chapitre 3 pour décrire la dynamique de spin de l'exciton.

Pour cela, nous exprimons l'hamiltonien séculaire en fonction des matrices de Pauli σ_i (avec $i=x,y,z$) et de la matrice identité Id :

$$\tilde{\mathcal{H}}_{sec} = -\frac{\hbar\Delta}{2}Id + \frac{\hbar\Delta}{2}\sigma_z + \frac{\hbar\Omega^R(t)}{2}\sigma_x + \frac{\hbar\Omega^I(t)}{2}\sigma_y \quad (C.1)$$

Avec :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (C.2)$$

$\Omega^R(t)$ est la partie réelle et $\Omega^I(t)$ la partie imaginaire de $\Omega(t)$:

$$\Omega(t) = \Omega^R(t) + i\Omega^I(t) \quad (C.3)$$

D'autre part, la matrice densité $\tilde{\rho}$ peut s'exprimer en fonction de la valeur moyenne du spin effectif :

$$\tilde{\rho} = \left(\frac{1}{2}Id + \frac{1}{\hbar}\langle\vec{S}\rangle\vec{\sigma}\right) \quad (C.4)$$

Id désigne la matrice identité, $\vec{\sigma}=(\sigma_x,\sigma_y,\sigma_z)$ les matrices de Pauli, et $\langle\vec{S}\rangle=Tr(\hat{\rho}\hat{\vec{S}})$.

Grâce aux équations C.1 et C.4, nous pouvons ré-écrire l'équation d'évolution dans le référentiel tournant du paragraphe 4.12 :

$$\boxed{i\hbar\frac{\partial\tilde{\rho}(t)}{\partial t} = [\tilde{\mathcal{H}}(t), \tilde{\rho}(t)]} \quad (C.5)$$

Le commutateur $[\tilde{\mathcal{H}}(t)_{sec}, \tilde{\rho}(t)]$ s'écrit :

$$[\tilde{\mathcal{H}}_{sec}, \tilde{\rho}] = \left[\frac{\hbar\Omega^R(t)}{2}\sigma_x + \frac{\hbar\Omega^I(t)}{2}\sigma_y + \frac{\hbar\Delta}{2}\sigma_z, \langle S_x\rangle\sigma_x + \langle S_y\rangle\sigma_y + \langle S_z\rangle\sigma_z\right]$$

En utilisant les relations connues :

$$\begin{cases} [\sigma_x, \sigma_y] = -[\sigma_y, \sigma_x] = 2i\sigma_z \\ [\sigma_y, \sigma_z] = -[\sigma_z, \sigma_y] = 2i\sigma_x \\ [\sigma_x, \sigma_z] = -[\sigma_z, \sigma_x] = -2i\sigma_y \end{cases}$$

Nous obtenons par identification :

$$\begin{cases} \frac{d\langle S_x \rangle}{dt} = \Omega^I \langle S_z \rangle - \Delta \langle S_y \rangle \\ \frac{d\langle S_y \rangle}{dt} = -\Omega^R \langle S_z \rangle + \Delta \langle S_x \rangle \\ \frac{d\langle S_z \rangle}{dt} = \Omega^R \langle S_y \rangle - \Omega^I \langle S_x \rangle \end{cases} \quad (\text{C.6})$$

Ce qui peut s'écrire de façon plus concise comme :

$$\boxed{\frac{d\langle \vec{S} \rangle(t)}{dt} = \vec{\Omega}_{\mathcal{T}}(t) \wedge \langle \vec{S} \rangle(t)} \quad (\text{C.7})$$

Par la suite, nous simplifierons la notation $\langle \vec{S} \rangle$, que nous écrirons directement $\langle \vec{S} \rangle \equiv \vec{S}$.

$\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ est le vecteur "Rabi généralisé" dont les composantes s'expriment, dans le repère (Oxy) :

$$\vec{\Omega}_{\mathcal{T}} = \hbar \begin{pmatrix} \Omega^R(t) \\ \Omega^I(t) \\ \Delta \end{pmatrix} \quad (\text{C.8})$$

Sa norme est la fréquence de Rabi généralisée Ω_T :

$$|\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}| = \sqrt{|\Omega^R(t)|^2 + |\Omega^I(t)|^2 + \Delta^2} = \sqrt{|\Omega(t)|^2 + \Delta^2} = \Omega_T \quad (\text{C.9})$$

Dans le cas d'une impulsion de durée limitée par transformée de Fourier, le pseudo-spin effectif effectue une rotation autour du vecteur de Rabi généralisé $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$, fixe dans le temps.

En revanche, dans le cas d'une impulsion présentant une dérive de fréquence linéaire (cas du passage adiabatique rapide), le mouvement du pseudo-spin dans ce référentiel est plus complexe : il prend la forme d'une spirale. En effet, la fréquence instantanée de l'impulsion change au cours du temps. De ce fait, le vecteur $\vec{\Omega}(t)$ a une partie imaginaire et le vecteur $\vec{\Omega}_{\mathcal{T}}$ autour duquel le spin effectif précesse a alors une composante non nulle sur l'axe (Oy).

En utilisant une nouvelle transformation unitaire mieux adaptée (détaillée p.14), $\Omega(t)$ devient réel et nous pouvons décrire le passage adiabatique dans la sphère de Bloch plus simplement.

Bibliographie

- [1] T.H.Stievater, X.Li, D.G.Steel, D.Gammon, D.S.Katzer, D.Park, C.Piermarocchi, and L.J.Sham. *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots. Physical Review Letters*, **87** : 133603, (2001).
- [2] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard. *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs. Physical Review Letters*, **73** : 716, (1994).
- [3] T.Amand, V.Blanchet, B.Girard, and X.Marie. *Coherent Control in Atoms, Molecules, and Solid (Chap.11) dans Femtosecond Laser Pulses*. Springer, (2005).
- [4] T.Ideguchi, K.Yoshioka, A.Mysyrowicz, and M.Kuwata-Gonokami. *Coherent Quantum Control of Excitons at Ultracold and High Density in Cu_2O with Phase Manipulated Pulses. Physical Review Letters*, **100** : 233001, (2008).
- [5] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, and K. Köhler. *Ultrafast Coherent Control and Destruction of Excitons in Quantum Wells. Physical Review Letters*, **75** : 2598, (1995).
- [6] X. Marie, P. Le Jeune, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, M. Paillard, and R. Planel. *Coherent Control of the Optical Orientation of Excitons in Quantum Wells. Physical Review Letters*, **79** : 3222, (1997).
- [7] X. Marie, P. Renucci, S. Dubourg, T. Amand, P. Le Jeune, J. Barrau, J. Bloch, and R. Planel. *Coherent control of exciton polaritons in a semiconductor microcavity. Physical Review B.*, **59** : R2494, (1999).
- [8] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kalevich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, and V. M. Ustinov. *Time-resolved photoluminescence in self-assembled InAs/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation. Applied Physics Letters*, **76** : 76, (2000).

- [9] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Selling, D. Ouyang, and D. Bimberg. *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots. Physical Review Letters*, **87** : 157401, (2001).
- [10] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, and J. M. Gérard. *Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters*, **86** : 1634, (2001).
- [11] P. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, (1995).
- [12] Landolt-Börnstein. *Numerical data and functional relationship in science and technology, Vol. III/17a et Vol. III/17b*. Springer, Berlin, (1982).
- [13] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, (1992).
- [14] O. Brandt, H. Lage, and K. Ploog. *Heavy- and light-hole character of optical transitions in InAs/GaAs single-monolayer quantum wells. Physical Review B.*, **45** : 4217, (1992).
- [15] Jean-Michel Gérard. *In situ probing at the growth temperature of the surface composition of (InGa)As and (InAl)As. Applied Physics Letters*, **61** : 2096, (1992).
- [16] J. M. Moison, L. Leprince, F. Barthe, F. Houzay, N. Lebouché, J. M. Gérard, and J. Y. Marzin. *Self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. Applied Surface Science*, **92** : 526, (1996).
- [17] J. P. McCaffrey, M. D. Robertson, S. Fafard, Z. R. Wasilewski, E. M. Griswold, and L. D. Madsen. *Determination of the size, shape, and composition of indium-flushed self-assembled quantum dots by transmission electron microscopy. Journal of Applied Physics*, **88** : 2272, (2000).
- [18] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. André, and O. Vatel. *Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs. Applied Physics Letters*, **64** : 196, (1994).
- [19] J. M. Gérard, J. Y. Marzin, G. Zimmermann, A. Ponchet, O. Cabrol, D. Barrier, B. Jusserand, and B. Sermage. *InAs/GaAs quantum boxes obtained by self-organized growth : intrinsic electronic properties and applications. Solid-State Electronics*, **40** : 807, (1996).
- [20] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill, and J. C. Clark.

- Inverted Electron-Hole Alignment in InAs – GaAs Self-Assembled Quantum Dots. Physical Review Letters*, **84** : 733, (2000).
- [21] C. Weisbuch and B. Vinter. *Quantized semiconductor structures : Physics and Applications*. Academic, Boston, (1991).
- [22] 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. Applied Physics Letters*, **47** : 1099, (1985).
- [23] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg. *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band $k \cdot p$ theory. Physical Review B.*, **59** : 5688, (1999).
- [24] Alberto Franceschetti and Alex Zunger. *Pseudopotential calculations of electron and hole addition spectra of InAs, InP, and Si quantum dots. Physical Review B.*, **62** : 2614, (2000).
- [25] E.Moreau, I.Robert, J. M.Gérard, I.Abram, L.Manin, and V.Thierry-Mieg. *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. Applied Physics Letters*, **79** : 2865, (2001).
- [26] R. M.Stevenson, R. J.Young, P.Atkinson, K.Cooper, D. A.Ritchie, and A. J.Shields. *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. Nature*, **439** : 179, (2006).
- [27] Pierre-François Braun. *Dynamique de relaxation des excitons chargés X^+ dans les boîtes quantiques auto-organisées InAs/GaAs*. Thèse de doctorat, INSA, Toulouse, (2007).
- [28] Mathieu Sénès. *Dynamique de spin des excitons neutres ou chargés dans les boîtes quantiques InAs/GaAs*. Thèse de doctorat, INSA, Toulouse, (2004).
- [29] Mathieu Paillard. *Dynamique de relaxation de spin dans les boîtes quantiques auto-organisées InAs/GaAs*. Thèse de doctorat, INSA, Toulouse, (2001).
- [30] K. V.Kavokin. *Fine structure of the quantum-dot trion. Phys. Stat. Sol.(a)*, **195** : 592, (2003).
- [31] E. L.Ivchenko. *Superlattices and Other Heterostructures - Symmetry and Optical Phenomena*. Springer Series, (1995).
- [32] T.Amand, X.Marie, M.Senes, O.Krebs, S.Laurent, S.Cortez, P.Voisin, and J. M.Gérard. *Spin dynamics of neutral and charged excitons in InAs/GaAs quantum dots : towards Q-bit implementation ? Superlattices and Microstructures*, **32** : 157, (2002).

- [33] 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. Physical Review Letters*, **76** : 3005, (1996).
- [34] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke, and S. N. Walck. *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $In_{0.60}Ga_{0.40}As$ Quantum Dots. Physical Review Letters*, **82** : 1748, 1999.
- [35] M. Combescot and M. A. Dupertuis. *The carrier "anti-binding" in quantum dots : a charge separation effect. European Physical Journal B.*, **50** : 459, (2006).
- [36] Georges Lampel. *Nuclear Dynamic Polarization by Optical Electronic Saturation and Optical Pumping in Semiconductors. Physical Review Letters*, **20** : 491, (1968).
- [37] F. Meier and B.P. Zakharchenya. *Optical Orientation*. North Holland, Amsterdam, (1984).
- [38] T. C. Damen, Luis Vina, J. E. Cunningham, Jagdeep Shah, and L. J. Sham. *Subpicosecond spin relaxation dynamics of excitons and free carriers in GaAs quantum wells. Physical Review Letters*, **67** : 3432, (1991).
- [39] V. K. Kalevich, M. Paillard, K. V. Kavokin, X. Marie, A. R. Kovsh, T. Amand, A. E. Zhukov, Yu. G. Musikhin, V. M. Ustinov, E. Vanelle, and B. P. Zakharchenya. *Spin redistribution due to Pauli blocking in quantum dots. Physical Review B.*, **64** : 045309, (2001).
- [40] D. J. Hilton and C. L. Tang. *Optical Orientation and Femtosecond Relaxation of Spin-Polarized Holes in GaAs. Physical Review Letters*, **89** : 146601, (2002).
- [41] Zutic, Fabian, and Das Sarma. *Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. Reviews of Modern Physics*, **76** : 323, (2004).
- [42] Mikhail I. Dyakonov. *Spin Physics in Semiconductors*. Springer, (2008).
- [43] R. J. Elliott. *Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. Physical Review*, **96** : 266, (1954).
- [44] M. I. Dyakonov and V. I. Perel. *Spin Orientation of electrons associated with the interband absorption of light in semiconductors. Sov. Phys. JETP*, **33** : 1053, (1971).

- [45] M. A. Brand, A. Malinowski, O. Z. Karimov, P. A. Marsden, R. T. Harley, A. J. Shields, D. Sanvitto, D. A. Ritchie, and M. Y. Simmons. *Precession and Motional Slowing of Spin Evolution in a High Mobility Two-Dimensional Electron Gas. Physical Review Letters*, **89** : 236601, (2002).
- [46] X.Marie. *ICPS 24*. (1998).
- [47] Alexander V. Khaetskii and Yuli V. Nazarov. *Spin relaxation in semiconductor quantum dots. Physical Review B.*, **61** : 12639, (2000).
- [48] 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. Physical Review Letters*, **94** : 116601, (2005).
- [49] I. A.Akimov, D. H.Feng, and F.Henneberger. *Electron Spin Dynamics in a Self-Assembled Semiconductor Quantum Dot. Physical Review Letters*, **97** : 056602, (2006).
- [50] Ph. Roussignol, P. Rolland, R. Ferreira, C. Delalande, G. Bastard, A. Vinnattieri, J. Martinez-Pastor, L. Carraresi, M. Colocci, J. F. Palmier, and B. Etienne. *Hole polarization and slow hole-spin relaxation in an n-doped quantum-well structure. Physical Review B.*, **46** : 7292, (1992).
- [51] T. Flissikowski, I. A. Akimov, A. Hundt, and F. Henneberger. *Single-hole spin relaxation in a quantum dot. Physical Review B.*, **68** : 161309, (2003).
- [52] B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand, A. Miard, A. Lemaître, X. Marie, and M. Chamarro. *Hole-Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots. Physical Review Letters*, **102** : 146601, (2009).
- [53] D.Heiss, S.Schaeck, H.Huebl, M.Bichler, G.Abstreiter, J. J.Finley, D. V.Bulaev, and Daniel Loss. *Observation of extremely slow hole spin relaxation in self assembled quantum dots. Physical Review B.*, **76** : 241306(R), (2007).
- [54] Miro Kroutvar, Yann Ducommun, Dominik Heiss, Max Bichler, Dieter Schuh, Gerhard Abstreiter, and Jonathan J. Finley. *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. Nature*, **432** : 81, (2004).
- [55] Max Born and Emil Wolf. *Principle of Optics*. Cambridge university Press, 7th edition, (1999).

- [56] Lars Nilse, Hillary J. Davies, and Charles S. Adams. *Synchronous Tuning of Extended Cavity Diode Lasers : The Case for an Optimum Pivot Point. Applied Optics*, **38** :548, (1999).
- [57] M. Françon. *Optical interferometry*. Academic Press, (1966).
- [58] W.H.Steel. *Interferometry*. University Press, Cambridge, (1967).
- [59] M. C. Bigeon, J. L. Cojan, and P. Giacomo. *Isolement et Analyse de la Raie interdite $\lambda = 2656 \text{ \AA}$ du Mercure (63P0 - 61S0). Applied Optics*, **4** : 907, (1965).
- [60] G.Hernandez. *Analytical Description of a Fabry-Perot Photoelectric Spectrometer. Applied Optics*, **5** : 1745, (1966).
- [61] Hacène Boukari, E. D.Palik, and robert W.Gammon. *Closed-form expressions to fit data obtained with a multipass fabry-Perot interferometer. Applied Optics*, **34** : 69, (1995).
- [62] E.D.Palik, Hacène Boukari, and Robert W.Gammon. *Experimental study of the effect of surface defects on the finesse and contrast of a Fabry-Perot interferometer. Applied Optics*, **35** : 38, (1996).
- [63] Alexander Högele, Stefan Seidl, Martin Kröner, Khaled Karrai, Richard J.Warburton, Brian D.Gerardot, and Pierre M.Petroff. *Voltage-Controlled Optics in a Quantum Dot. Physical Review Letters*, **93** : 217401, (2004).
- [64] Brian D.Gerardot, Daniel Brunner, Paul A.Dalgarno, Patrick Öhberg, Stefan Seidl, martin Kröner, Khaled Karrai, Nick G.Stoltz, Pierre M.Petroff, and Richard J.Warburton. *Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot. Nature*, **451** : 441, (2008).
- [65] C.Dufour and R.Picca. *Sur l'interféromètre Fabry-Pérot : importance des imperfections des surfaces. Rev.d'Opt.*, **24** : 19, (1945).
- [66] R.Chabbal. *Recherche des meilleures conditions d'utilisation d'un spectromètre photoélectrique Fabry-Pérot. Rev.Rech.Centr.Nat.Rech.Sci.*, **24** : 138, (1953).
- [67] Thomas M. Herbst and Steven V. W. Beckwith. *Active stabilization system for Fabry-Perot interferometers. Applied Optics*, **28** : 5275, (1989).
- [68] 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).

- [69] Martin Kröner, Kathrina M.Weiss, Benjamin Biedermann, Stefan Seidl, Stefan Manus, Alexander W.Holleitner, Antonio Badolato, Pierre M.Petroff, Brian D.Gerardot, Richard J.Warburton, and Khaled Karrai. *Optical Detection of Single-Electron Spin Resonance in a Quantum Dot. Physical Review Letters*, **100** : 156803, (2008).
- [70] R.Melet, V.Violotis, A.Enderlin, D.Roditchev, X. L.Wang, T.Guillet, and R.Grousseau. *Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime. Physical Review B.*, **78** : 073301, (2008).
- [71] A Muller, E.B Flagg, P. Bianucci, X.Y. Wang, D.G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G.J. Salamo, M. Xiao, and C.K. Shih. *Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity. Physical Review Letters*, **99** : 187402, (2007).
- [72] A.Nick Vamivakas, Yong Zhao, Chao-Yang lu, and Mete Atatüre. *Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence. Nature Physics*, **5** : 198, (2009).
- [73] Benoît Wattellier. *Amélioration des performances des chaines laser solides utilisant l'amplification à dérive de fréquence : nouveaux réseaux de diffraction à haute tenue au flux et mise en forme programmable de faisceaux laser par mise en forme de la phase spatiale.* Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (2001).
- [74] A.Monmayrant and B.Chatel. *New phase and amplitude high resolution pulse shaper. Rev. Sci. Instr.*, **75** : 2668, (2004).
- [75] Antoine Monmayrant. *Façonnage et caractérisation d'impulsions ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples.* Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, (2005).
- [76] A. M. Weiner. *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. Rev.Sci.Instr.*, **71** : 1929, (2000).
- [77] O. Martinez. *Grating and prism compressors in the case of finite beam size. J Opt Soc Am B Opt Physics*, **3** : 929, (1986).
- [78] Béatrice Chatel, Jérôme Degert, Sabine Stock, and Bertrand Girard. *Competition between sequential and direct paths in a two-photon transition. Physical Review A.*, **68** : 041402, (2003).
- [79] G. Chériaux. *Influences des distortions de phase sur le profil d'impulsions femtosecondes dans l'amplification à dérive de fréquence.* Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (1993).

- [80] S. A. Crooker, J. J. Baumberg, F. Flack, N. Samarth, and D. D. Awschalom. *Terahertz Spin Precession and Coherent Transfer of Angular Momenta in Magnetic Quantum Wells*. *Physical Review Letters*, **77** : 2814, (1996).
- [81] R. E. Worsley, N. J. Traynor, T. Grevatt, and R. T. Harley. *Transient Linear Birefringence in GaAs Quantum Wells : Magnetic Field Dependence of Coherent Exciton Spin Dynamics*. *Physical Review Letters*, **76** : 3224, (1996).
- [82] A.Abragam. *The Principles of Nuclear Magnetism*. Clarendon Press, (1961).
- [83] B.Eble, O.Krebs, A.Lemaître, K.Kowalik, P.Voisin, B.Urbaszek, X.Marie, and T.Amand. *Dynamic nuclear polarization of a single charge tunable InAs/GaAs quantum dot*. *Physical Review B.*, **74** : 081306(R), (2006).
- [84] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V. I. Safarov. *Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions*. *Physical Review B.*, **15** : 5780, (1977).
- [85] D. Gammon, Al. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov. *Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*. *Physical Review Letters*, **86** : 5176, (2001).
- [86] P.-F.Braun, B.Urbaszek, T.Amand, and X.Marie. *Bistability of the nuclear polarization created through optical pumping in $In_{1-x}Ga_xAs$ quantum dots*. *Physical Review B.*, **74** : 245306, (2006).
- [87] C. W.Lai, P.Maletinsky, A.Badolato, and A.Imamoglu. *Knight-Field Enabled Nuclear Spin Polarization in Single Quantum Dots*. *Physical Review Letters*, **96** : 167403, (2006).
- [88] O.Krebs, P.Maletinsky, T.Amand, B.Urbaszek, A.Lemaître, P.Voisin, X.Marie, and A.Imamoglu. *Anomalous Hanle Effect due to Optically Created Transverse Overhauser Field in Single InAs/GaAs Quantum Dots*. *Physical Review Letters*, **104** :056603, (2010).
- [89] R. I.Dzhioev and V. L.Korenev. *Stabilization of the Electron-Nuclear Spin Orientation in Quantum Dots by the Nuclear Quadrupole Interaction*. *Physical Review Letters*, **99** : 037401, (2007).
- [90] Changxue Deng and Xuedong Hu. *Selective dynamic nuclear spin polarization in a spin-blocked double dot*. *Physical Review B.*, **71** :033307, (2005).
- [91] Olivier Krebs, Benoît Eble, Aristide Lemaître, Paul Voisin, Bernhard Urbaszek, Thierry Amand, and Xavier Marie. *Hyperfine interaction in InAs/GaAs*

- self-assembled quantum-dots : dynamical nuclear polarization versus spin relaxation. Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*, **9** :874, (2008).
- [92] Alexander V. Khaetskii, Daniel Loss, and Leonid Glazman. *Electron Spin Decoherence in Quantum Dots due to Interaction with Nuclei. Physical Review Letters*, **88** : 186802, (2002).
- [93] B.Urbaszek, P.-F.Braun, T.Amand, O.Krebs, T.Belhadj, A.Lemaître, P.Voisin, and X.Marie. *Efficient dynamical nuclear polarization in quantum dots : Temperature dependence. Physical Review B.*, **76** : 201301(R), (2007).
- [94] A. I.Tartakowskii, T.Wright, A.Russell, V. I.Fal'ko, A. B.Van'kov, J.Skiba-Szymanska, I.Drouzas, R. S.Kolodka, M. S.Skolnick, P. W.Fry, A.Tahraoui, H. Y.Liu, and M.Hopkinson. *Nuclear Spin Switch in Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters*, **98** : 026806, (2007).
- [95] P.Maletinsky, C. W.Lai, A.Badolato, and A.Imamoglu. *Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins. Physical Review B.*, **75** : 035409, (2007).
- [96] V. L.Korenev. *Nuclear Spin Nanomagnet in an Optically Excited Quantum Dot. Physical Review Letters*, **99** : 256405, (2007).
- [97] J. M. Taylor, C. M. Marcus, and M. D. Lukin. *Long-Lived Memory for Mesoscopic Quantum Bits. Physical Review Letters*, **90** : 206803, (2003).
- [98] Vladan Mlinar and Alex Zunger. *Internal electronic structure and fine structure of multiexcitons in semiconductor quantum dots. Physical Review B.*, **80** :205311, (2009).
- [99] Ming-Fu Tsai, Hsuan Lin, Chia-Hsien Lin, Sheng-Di Lin, Sheng-Yun Wang, Ming-Cheng Lo, Shun-Jen Cheng, Ming-Chih Lee, and Wen-Hao Chang. *Diamagnetic Response of Exciton Complexes in Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters*, **101** : 267402, (2008).
- [100] E. S. Moskalenko, K. F. Karlsson, P. O. Holtz, B. Monemar, W. V. Schoenfeld, J. M. Garcia, and P. M. Petroff. *Acceptor-induced threshold energy for the optical charging of InAs single quantum dots. Physical Review B.*, **66** : 195332, (2002).
- [101] E. S. Moskalenko, K. F. Karlsson, P. O. Holtz, B. Monemar, W. V. Schoenfeld, J. M. Garcia, and P. M. Petroff. *Influence of excitation energy on charged exciton formation in self-assembled InAs single quantum dots. Physical Review B.*, **64** : 085302, (2001).

- [102] A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Yu. G. Kusrayev, and F. Henneberger. *Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots. Physical Review B.*, **70** : 241305, (2004).
- [103] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, and H. Mariette. *Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots. Physical Review B.*, **76** : 045331, (2007).
- [104] E. A. Chekhovich, M. N. Makhonin, K. V. Kavokin, A. B. Krysa, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii. *Pumping of Nuclear Spins by Optical Excitation of Spin-Forbidden Transitions in a Quantum Dot. Physical Review Letters*, **104** : 066804, (2010).
- [105] Max Brousseau. *Les défauts ponctuels dans les semiconducteurs*. Les Editions de Physique, (1988).
- [106] Aristide Lemaître. Communication privée.
- [107] D. Lagarde, A. Balocchi, P. Renucci, H. Carrère, F. Zhao, T. Amand, X. Marie, Z. X. Mei, X. L. Du, and Q. K. Xue. *Exciton and hole spin dynamics in ZnO investigated by time-resolved photoluminescence experiments. Physical Review B.*, **78** : 033203, (2008).
- [108] J.Barrau, G.Bacquet, F.Hassen, N.Lauret, T.Amand, and M.Brousseau. *Luminescence polarization and hole spin-relaxation in quantum wells. Superlattices and Microstructures*, **14** : 27, (1993).
- [109] S.Pfalz, R.Winkler, T.Nowitzki, D.Reuter, A. D.Wieck, D.Hägele, and M.Oestreich. *Optical orientation of electron spin in GaAs quantum wells. Physical Review B.*, **71** :165305, (2005).
- [110] I. A. Merkulov, Al. L. Efros, and M. Rosen. *Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. Physical Review B.*, **65** : 205309, (2002).
- [111] M. Sénès, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, J. Tribollet, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, and J.-M. Gérard. *Exciton spin manipulation in InAs/GaAs quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects. Physical Review B.*, **71** : 115334, (2005).
- [112] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, and J. M. Gérard. *Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters*, **86** : 1634, 2001.
- [113] 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. Physical Review B.*, **65** : 195315, (2002).
- [114] A. Vinattieri, Jagdeep Shah, T. C. Damen, D. S. Kim, L. N. Pfeiffer, M. Z. Maialle, and L. J. Sham. *Exciton dynamics in GaAs quantum wells under resonant excitation. Physical Review B.*, **50** : 10868, (1994).
- [115] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. *Sharp-Line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure. Physical Review Letters*, **73** : 1138, (1994).
- [116] C.Cohen-Tannoudji, J.Dupont-Roc, and G.Grynberg. *Atom-Photon Interactions*. Wiley-Interscience, (1998).
- [117] I. I. Rabi. *Space quantization in a Gyrrating Magnetic Field. Physical Review*, **51** : 652, (1937).
- [118] I. I. Rabi, S.Millman, P.Kusch, and J. R.Zacharias. *The Molecular Beam Resonance Method for Measuring Nuclear Magnetic Moments. Physical Review*, **55** : 526, (1939).
- [119] S. T. Cundiff, A. Knorr, J. Feldmann, S. W. Koch, E. O. Göbel, and H. Nickel. *Rabi Flopping in Semiconductors. Physical Review Letters*, **73** : 1178, (1994).
- [120] A. Schülzgen, R. Binder, M. E. Donovan, M. Lindberg, K. Wundke, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and N. Peyghambarian. *Direct Observation of Excitonic Rabi Oscillations in Semiconductors. Physical Review Letters*, **82** : 2346, (1999).
- [121] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando. *Exciton Rabi Oscillation in a Single Quantum Dot. Physical Review Letters*, **87** : 246401, (2001).
- [122] S. Stuffer, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler. *Quantum optical properties of a single $In_xGa_{1-x}As - GaAs$ quantum dot two-level system. Physical Review B.*, **72** : 121301, (2005).
- [123] S. J. Boyle, A. J. Ramsay, A. M. Fox, M. S. Skolnick, A. P. Heberle, and M. Hopkinson. *Beating of Exciton-Dressed States in a Single Semiconductor InGaAs/GaAs Quantum Dot. Physical Review Letters*, **102** : 207401, (2009).
- [124] L.Besombes, J. J.Baumberg, and J.Motohisa. *Coherent Spectroscopy of Optically Gated Charged Single InGaAs Quantum Dots. Physical Review Letters*, **90** : 257402, (2003).

- [125] Michael Garwood and Lance DelaBarre. *The Return of the Frequency Sweep : Designing Adiabatic Pulses for Contemporary NMR. Journal of Magnetic Resonance*, **153** : 155, (2001).
- [126] N. V.Vitanov, M.Fleischhauer, B. W.Shore, and K.Bergman. *Coherent manipulation of atoms and molecules by sequential laser pulses. Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, **46** :55, (2001).
- [127] J. S.Melinger, Suketa R. Gandhi, A.Hariharan, D.Goswami, and W. S.Warren. *Adiabatic population transfer with frequency-swept laser pulses. Journal of Chemical Physics*, **101** : 6439, (1994).
- [128] Cathie Ventalon. *Ascension vibrationnelle dans les hémoprotéines à l'aide d'impulsions infrarouges intenses à dérive de fréquence*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (2003).
- [129] A.Muller, Q. Q.Wang, P.Bianucci, C. K.Shih, and Q. K .Xue. *Determination of anisotropic dipole moments in self-assembled quantum dots using Rabi oscillations. Applied Physics Letters*, **84** : 981, (2004).
- [130] A.Messiah. *Quantum Mechanics*. Dunod, (1964).
- [131] G.Medeiros-Ribeiro, D.Leonard, and P. M.Petroff. *Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots. Applied Physics Letters*, **66** : 1767, (1995).
- [132] Benoît Eble. *Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs sous pompage optique orienté*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, (2006).
- [133] B. Urbaszek, R. J. Warburton, K. Karrai, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, and J. M. Garcia. *Fine Structure of Highly Charged Excitons in Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters*, **90** : 247403, (2003).
- [134] J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle, and P. A. Maksym. *Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot. Physical Review B*, **63** : 161305, (2001).
- [135] 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).

- [136] E. B.Flagg, A.Muller, J. W.Robertson, S.Founta, D. G.Deppe, M.Xiao, W.Ma, G. J.Salamo, and C. K.Shih. *Resonantly driven coherent oscillations in a solid-state quantum emitter. Nature Physics*, **5** :203, (2009).
- [137] 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. Physical Review Letters*, **94** :197402, (2005).
- [138] Jan Dreiser, Mete Atatüre, Christophe Galland, Tina Müller, Antonio Bado-lato, and Atac Imamoglu. *Optical investigations of quantum dot spin dyna-mics as a function of external electric and magnetic fields. Physical Review B.*, **77** :075317, (2008).
- [139] Stefan Stuffer, Patrick Ester, Artur Zrenner, and Max Bichler. *Power broadening of the exciton linewidth in a single InGaAs/GaAs quantum dot. Applied Physic Letters*, **85** : 4202, (2004).
- [140] Khaled Karrai and Richard J. Warburton. *Optical transmission and reflec-tion spectroscopy of single quantum dots. Superlattices and Microstructures*, **33** : 311, (2003).
- [141] M. Combescot and O. Betbeder-Matibet. *Biexciton oscillator strength. Phy-sical Review B.*, **80** : 205313, (2009).
- [142] G.Lindblad. *On the generators of quantum dynamical semigroups. Commun. Math.Phys.*, **48** : 119, (1976).
- [143] S.Stuffer, P.Machnikowski, P.Ester, M.Bichler, V. M.Axt, T.kuhn, and A.Zrenner. *Two-photon Rabi oscillations in a single $In_xGa_{1-x}As - GaAs$ quantum dot. Physical Review B.*, **73** : 125304, (2006).
- [144] A. J. Ramsay, Achanta Venu Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. *Damping of Exciton Rabi Rotations by Acous-tic Phonons in Optically Excited InGaAs/GaAs Quantum Dots. Physical Review Letters*, **104** : 017402, (2010).
- [145] A.J.Ramsay, T.M.Godden, S.J.Boyle, E.M.Gauger, A.Nazir, B.W.Lovett, A.M.Fox, and M.S.Skolnick. *Phonon induced Rabi frequency renormalization of optically driven single InAs/GaAs quantum dots. arXiv :1005.1580v1*, (2010).
- [146] I. A.Akimov, J. T.Andrews, and F.Henneberger. *Stimulated Emission from the Biexciton in a Single Self-Assembled II – VI Quantum Dot. Physical Review Letters*, **96** : 067401, (2006).

- [147] A. J. Bennett, R. B. Patel, C. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields. *Interference of dissimilar photon sources*. *Nature Physics*, **5** : 715, (2009).
- [148] A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, Al. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, and M. Bayer. *Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots*. *Science*, **313** : 341, (2006).
- [149] B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand, A. Miard, A. Lemaître, X. Marie, and M. Chamarro. *Hole-Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots*. *Physical Review Letters*, **102** : 146601, (2009).
- [150] T. Calarco, A. Datta, P. Fedichev, E. Pazy, and P. Zoller. *Spin-based all-optical quantum computation with quantum dots : Understanding and suppressing decoherence*. *Physical Review A*, **68** : 012310, (2003).
- [151] Filippo Troiani, Elisa Molinari, and Ulrich Hohenester. *High-Finesse Optical Quantum Gates for Electron Spins in Artificial Molecules*. *Physical Review Letters*, **90** : 206802, (2003).
- [152] Pochung Chen, C. Piermarocchi, L. J. Sham, D. Gammon, and D. G. Steel. *Theory of quantum optical control of a single spin in a quantum dot*. *Physical Review B.*, **69** : 075320, (2004).
- [153] David Press, Thaddeus Ladd, Bingyang Zhang, and Yoshihisa Yamamoto. *Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses*. *Nature*, **456** : 218, (2008).
- [154] Michael Fleischhauer, Atac Imamoglu, and Jonathan P. Marangos. *Electromagnetically induced transparency : Optics in coherent media*. *Review of Modern Physics*, **77** : 633, (2005).
- [155] Peter Král, Ioannis Thanopoulos, and Moshe Shapiro. *Colloquium : Coherently controlled adiabatic passage*. *Review of Modern Physics*, **79** : 53, (2007).
- [156] Nirit Dudovich, Dan Oron, and Yaron Silberberg. *Coherent Transient Enhancement of Optically Induced Resonant Transitions*. *Physical Review Letters*, **88** : 123004, (2002).