



Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin

Aleksandar Jankovic

► To cite this version:

Aleksandar Jankovic. Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004. Français. NNT : . tel-00111990

HAL Id: tel-00111990

<https://theses.hal.science/tel-00111990>

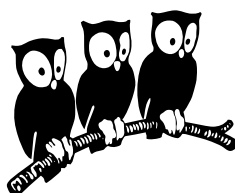
Submitted on 6 Nov 2006

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

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

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Lasers et Matière

présentée par

Aleksandar JANKOVIC

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

Sujet de la thèse :

**Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur :
rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin**

Soutenue le 29 novembre 2004 devant le jury composé de :

Mr. Gérard Bastard Directeur de thèse
Mr. Guillaume Cassaboïs Membre Invité
M^{me} Maria Chamarro Examineur
Mr. Gil Aquino Farias Examineur
Mr. Robson Ferreira Co-directeur de thèse
Mr. Jean-Michel Gérard Rapporteur
Mr. Jean-Yves Marzin Rapporteur
M^{lle} Angela Vasanelli Examineur

Remerciements

Je remercie tout d'abord Claude Delalande de m'avoir accueilli au sein du Laboratoire Pierre Aigrain.

Je suis très reconnaissant à Jean-Michel Gérard et Jean-Yves Marzin d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit ainsi qu'à Maria Chamarro, Gil Aquino Farias et Angela Vasanelli de participer à mon jury.

Je remercie tous mes collègues de laboratoire pour leur soutien amical en particulier les co-thésards (par ordre de rencontre) Angela Vasanelli, Olivier Verzelen, Duc Phuong Nguyen et Arnaud Verger ainsi que les expérimentateurs Guillaume Cassabois, Ivan Favéro, Cecile Kammerer et Philippe Roussignol pour toutes les discussions stimulantes concernant l'environnement électrostatique et l'interaction d'échange.

Je remercie Anne Matignon pour le règlement de tous les problèmes administratifs.

Enfin et surtout, un énorme MERCI à mes deux directeurs de thèse Gérald Bastard et Robson Ferreira non seulement pour leur aide scientifique, leur rigueur et la clarté de leurs explications mais aussi et surtout pour leurs qualités humaines, leur gentillesse, leur soutien et toutes les discussions non scientifiques que j'ai pu avoir avec eux.

Je tiens à remercier encore plus spécialement Robson qui bien qu'étant mon directeur de thèse non-officiel a toujours été disponible au cours de ces trois années et a énormément contribué à l'aboutissement de ce travail.

Table des matières

Introduction	9
1 Présentation des boîtes	11
1.1 Elaboration des boîtes	11
1.2 Niveaux d'énergie et fonction d'onde	12
1.2.1 Modélisation des boîtes	12
1.2.2 Calcul des états électroniques	13
1.2.3 Discontinuité de bande	18
1.2.4 Contraintes	18
1.2.5 Matériaux $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	21
1.2.6 Anisotropie de forme traitée comme une perturbation	21
1.2.7 Anisotropie : calcul variationnel	23
1.2.8 Champ électrique dans le plan	24
1.2.9 Remarques sur la paire électron-trou	26
1.3 Couplage avec la lumière	26
1.3.1 Hamiltonien de couplage	26
1.3.2 Transitions optiques	27
1.3.3 Elargissement homogène d'un système à deux niveaux	30
1.4 Méthodes de mesure expérimentale	32
1.4.1 Spectre de Photoluminescence	32
1.4.2 Excitation de la Photoluminescence	33
1.5 Conclusion	33
2 La boîte et son environnement	35
2.1 Mécanisme de décohérence dans les boîtes : les limites du modèle du macro-atome[20]	35
2.1.1 Degrés de liberté intrinsèques et extrinsèques	35
2.1.2 Couplage avec le réseau cristallin	36
2.1.3 Le problème de la largeur résiduelle de la raie 'à zéro phonon'	38
2.2 Défauts statiques présents autour des boîtes	38
2.3 Piège créé par une impureté	39
2.3.1 Etat localisé d'un électron dans la couche de mouillage	40
2.3.2 Influence d'un l'électron piégé dans la couche de mouillage sur l'état fondamental $ S\rangle$ de la boîte ronde	41
2.3.3 Comportement asymptotique de $\hbar\Delta_e$	42
2.4 Piège créé par un défaut d'interface	46

2.4.1	L'exciton lié à un défaut d'interface	46
2.4.2	Influence de l'exciton piégé sur la transition fondamentale de la boîte ronde	48
2.5	Temps mis en jeu	49
2.6	Champ électrique latéral	51
2.6.1	Champ électrique créé par une particule ponctuelle	51
2.6.2	Influence du champ sur les états propres de la boîte	51
2.7	Conclusion	54
3	Réponse optique des boîtes en environnement fluctuant	55
3.1	Influence d'un piège sur la boîte	56
3.1.1	Modélisation mathématique	56
3.1.2	Evolution de la matrice densité	58
3.2	Spectre	59
3.2.1	Equations de Bloch optique	59
3.2.2	Propriété de la lumière émise par la boîte	61
3.3	Système à 2 niveaux	63
3.3.1	Le spectre de PL en l' 'absence' d'excitation lumineuse	63
3.3.2	L'excitation résonante et le triplet de fluorescence	65
3.4	Système à 3 niveaux	65
3.4.1	Simulation de PL	65
3.4.2	Compétition entre relaxation et couplage avec la lumière	68
70		
3.4.3	Fluctuations et fortes puissances d'excitation	72
3.4.4	Simulation de PLE	72
3.4.5	Discussion	75
3.5	Cas général	75
3.5.1	Fluctuations engendrées par un ensemble de pièges équivalents	75
3.5.2	Distribution quelconque	77
3.5.3	Detection et situation expérimentale	80
3.5.4	Résultats expérimentaux	82
3.6	Conclusion	85
4	Structure fine	87
4.1	Interaction d'échange dans une boîte quantique	87
4.1.1	Origine de l'interaction d'échange	87
4.1.2	Représentation de l'hamiltonien à deux corps	88
4.2	Splitting d'échange	89
4.2.1	Interaction d'échange courte portée et longue portée	89
4.2.2	Traitement du problème	89
4.2.3	Calcul du splitting d'échange longue portée	90
4.3	Influence d'une anisotropie de forme sur le splitting d'échange de la transition interbande fondamentale	93
4.3.1	Calcul perturbatif	94
4.3.2	Calcul variationnel	97
4.3.3	Discussion	100

4.4	Influence d'un champ électrique latéral sur le splitting d'échange de la transition interbande fondamentale d'une boîte à symétrie cylindrique	100
4.4.1	Calcul perturbatif	102
4.4.2	Calcul variationnel	104
4.4.3	Discussion	105
4.5	Superposition de l'anisotropie de forme et du champ électrique latéral	106
4.5.1	Annulation du splitting d'échange : résultats et enjeux	107
4.5.2	Evolution de l'angle de polarisation pour un champ placé suivant une direction différente des axes principaux de l'anisotropie de forme ($\theta_F \neq 0$ ou $\pi/2$)	108
4.5.3	Superposition : cas particuliers dans le cadre du modèle perturbatif	110
4.5.4	Superposition : cas particulier dans la cadre du modèle variationnel	112
4.5.5	Annulation du splitting d'échange : champ versus ellipticité . .	113
4.6	Modèle simplifié du confinement latéral de la boîte : l'oscillateur harmonique 2D anisotrope	116
4.6.1	Energies propres et état fondamental de la boîte	116
4.6.2	Présence d'un champ latéral	117
4.6.3	Interprétation des résultats sur le splitting d'échange	118
4.7	Dynamique du champ	119
4.7.1	Evaluation du champ électrique créé par une charge proche de la boîte	120
4.7.2	Champ électrique dont la direction fluctue	120
4.8	Anisotropie de polarisation	120
4.8.1	Taux de polarisation	121
4.8.2	Prise en compte du terme $\vec{k}\vec{p}$	121
4.8.3	Taux de polarisation	122
4.9	Conclusion	123
Complément du chapitre 4. : effet piézo-électrique		126
4.10	Modélisation de l'effet piézo-électrique	126
4.10.1	Tenseur piezo-électrique	126
4.10.2	Potentiel créé par la polarisation	127
4.10.3	Influence sur la forme de la fonction d'onde de l'état fondamental	128
4.11	Interaction d'échange	128
Conclusion générale		131
Annexe A. : éléments de matrice d'interaction coulombienne		133
Annexe B. : évolution stochastique de la matrice densité		135
Annexe C. : interaction d'échange dans les semiconducteurs		138
Annexe D. : splitting d'échange sur une base réduite		140

Annexe E. : modélisation de l'effet piézo-électrique	142
---	------------

Introduction

Ces dernières années, l'étude des systèmes de basse dimensionalité a connu un essor important. Tout d'abord, dans les années 70, l'intérêt s'est porté, pour des raisons techniques, sur l'étude des systèmes bidimensionnels (les puits quantiques) dans lesquels les porteurs sont confinés suivant une seule direction de l'espace. Ces systèmes désormais bien connus, on fait l'objet de nombreuses applications dans les domaines de la microélectronique et de l'optoélectronique. Ensuite, les progrès de la technologie des semiconducteurs dans les années 80, ont permis la fabrication de structures unidimensionnel (fils quantiques) puis zéro-dimensionnel (les boîtes quantiques).

L'originalité des boîtes quantiques réside dans le confinement à trois dimensions des porteurs qui y est réalisé. La disparition de l'invariance par translation dans ces systèmes produit une discrétisation de la densité d'états électroniques. Les transitions optiques que l'on observe sont donc semblables à celles que l'on peut observer dans un atome. Elles permettraient ainsi d'envisager, en matière condensée, des applications habituellement réservées à la physique atomique tout en offrant des possibilités de miniaturisation et d'intégration sous réserve que la vision de macro-atome isolé soit valable.

Il se trouve que cette image de macro-atome est trop simpliste : elle est principalement basée sur l'idée que les premiers niveaux électroniques des boîtes sont discrets mais ne tient pas compte du fait qu'elle rentre en interaction avec son environnement (environnement électrostatique, réseau cristallin).

L'étude de la cohérence des états électroniques ou du spin dans les nanostructures est un sujet primordial et s'est développée au cours des dernières années, motivée par le développement d'applications faisant appel aux concepts de la mécanique quantique tels que la manipulation de bits quantiques (calcul quantique), l'obtention de sources à photons uniques[1] (information quantique) ou bien l'électronique de spin.

Dans le premier chapitre, nous présenterons brièvement l'élaboration des boîtes, une méthode pour calculer les niveaux d'énergie des électrons et des trous, les différents paramètres qui peuvent entrer en compte ainsi que l'influence de l'interaction de la paire électron-trou de la boîte avec son environnement.

Dans le deuxième chapitre, nous présenterons différents types de perturbations électrostatiques et évaluerons le champ qu'elles créent au niveau de la boîte.

Dans le troisième chapitre, nous nous intéresserons à la réponse optique des systèmes étudiés sous l'influence de ces perturbations d'un point de vue dynamique. Nous proposerons en particulier un modèle simple qui nous permettra d'évaluer l'in-

fluence de ces perturbations sur l'émission de la lumière résultant de la recombinaison électron-trou dans la boîte.

Dans le quatrième chapitre, nous traiterons le cas de la structure fine de l'exciton confiné dans la boîte et le rôle de l'interaction d'échange en présence d'anisotropie et d'un champ électrique sur les propriétés de la lumière émise.

Chapitre 1

Présentation des boîtes

Dans ce chapitre, nous allons décrire les boîtes quantiques qui feront l'objet d'étude de ce manuscrit. Il nous permettra de présenter le formalisme et les outils nécessaires à la compréhension des calculs effectués dans les chapitres suivants et de passer en revue l'impact des différents paramètres sur les propriétés électroniques des boîtes.

1.1 Elaboration des boîtes

Les boîtes quantiques sur lesquelles reposent ce travail sont des boîtes quantiques de In(Ga)As obtenues par croissance auto-organisée (ou de Stranski-Krastanov). Une couche de mouillage parfaitement plane de GaAs croît lors des étapes initiales du procédé. Puis, suite au dépôt de quelques monocouches atomiques d'InAs (par des techniques d'épitaxie par jets moléculaires) (étape 1 fig. 1.1), l'énergie élastique accumulée devient suffisante pour favoriser la formation d'îlots tridimensionnels (conséquence directe du désaccord de maille entre les deux matériaux). On obtient ainsi un ensemble d'îlots d'InAs posés sur une couche très mince du même matériaux (la couche de mouillage) (étape 2 et figure 1.2 page suivante). L'énergie de bande interdite dans le GaAs étant largement supérieure à celle de l'InAs contraint, ces îlots sont alors capables de confiner les porteurs dans les trois directions de l'espace.

Typiquement, ces îlots ont un rayon de $100 \text{ \AA}$ et une hauteur d'une vingtaine d' $\text{\AA}$. La densité moyenne peut varier de 10^8 à 10^{11} cm^{-2} suivant les paramètres de croissance choisis. Ils sont distribués aléatoirement dans le plan, leur forme et leur taille sont difficiles à déterminer.

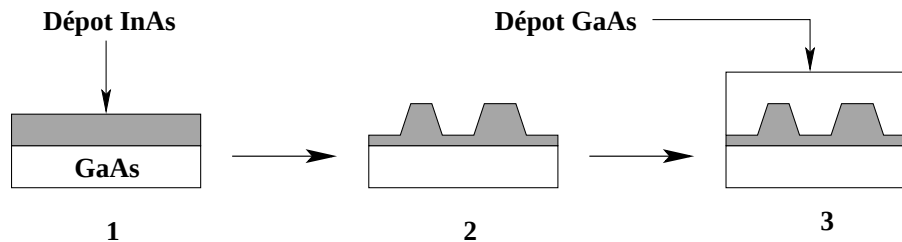


FIG. 1.1 – Fabrication des boîtes

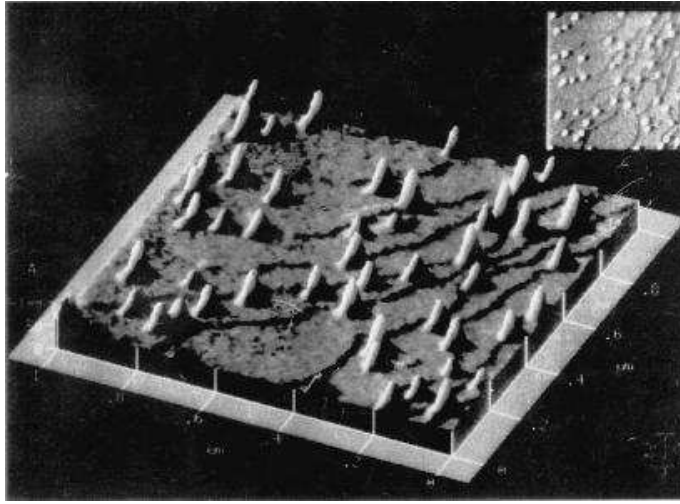


FIG. 1.2 – Image AFM de boîtes auto-organisées de InAs/GaAs
(J.M. Moison, CNET 1992)

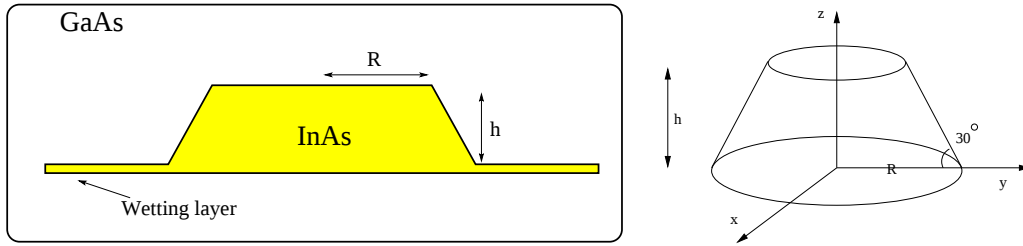


FIG. 1.3 – Modélisation des boîtes

Une fois le processus de croissance terminé, les îlots sont recouverts par du GaAs (étape 3). Il faut alors distinguer la forme des boîtes telles qu'elles apparaissent à la fin de la croissance (étape 2 et figure 1.2) et leur forme une fois qu'elles se trouvent dans la matrice de GaAs.

1.2 Niveaux d'énergie et fonction d'onde

1.2.1 Modélisation des boîtes

Pour le calcul des états électroniques, nous allons modéliser les boîtes d'InAs par des cônes tronqués à base circulaire dont l'angle à la base est fixé à 30° (voir figure 1.3). Cette boîte repose sur une couche bidimensionnelle d'InAs, la couche de mouillage, d'épaisseur constante égale à $d = 3.33 \text{ \AA}$ (soit une monocouche).

En fait, les boîtes sont légèrement elliptiques et allongées suivant la direction $[1\bar{1}0]$ (figure 1.4 page ci-contre), mais nous verrons un peu plus loin (paragraphe 1.2.4) que l'on peut traiter l'ellipticité comme une perturbation qui va ainsi mélanger les états propres déterminés dans le cas d'une boîte ronde. Dans ce dernier cas, le potentiel de confinement est à symétrie cylindrique et la projection du moment

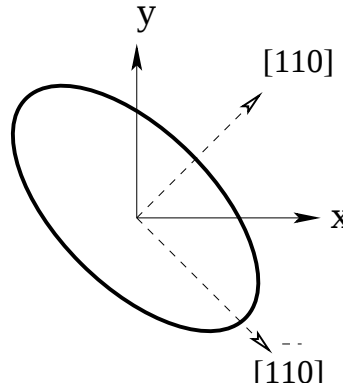


FIG. 1.4 – Ellipticité des boîtes

cinétique le long de l'axe de croissance (axe z) est un bon nombre quantique pour repérer les états confinés (voir equation (1.4)).

1.2.2 Calcul des états électroniques

Pour calculer les états électroniques, nous allons nous placer dans un formalisme de masse effective à une seule bande. Les résultats obtenus avec cette méthode sont cohérents avec ceux obtenus avec des méthodes plus complexes (comme la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$ à huit bandes) [2]. Ceci s'explique par le fait que l'effet physique le plus important dans les boîtes est la quantification due au confinement spatial des porteurs.

Les états des porteurs (électrons et trous) sont calculés dans le formalisme des fonctions enveloppes[3] : la fonction d'onde de l'électron et du trou $|\Phi\rangle = |u\rangle \otimes |\Psi\rangle$ s'écrit comme le produit de la fonction de Bloch de centre de zone u (qui oscille rapidement à l'échelle de la cellule élémentaire) par une fonction $|\Psi\rangle$ lentement variable à l'échelle de la cellule élémentaire : la fonction enveloppe.

Les fonctions enveloppes (fonction $|\Psi\rangle$)

L'hamiltonien pour la fonction enveloppe à une bande de l'électron s'écrit alors :

$$H_{eff(e)} = E_e^z + E_e^{\rho,\theta} + V_e(\rho, z) \quad (1.1)$$

Ici, E_e correspond à l'énergie cinétique de l'électron définie par :

$$E_e^z = -\frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{m_e^z(\rho, z)} \frac{\partial}{\partial z} \right), \quad (1.2)$$

$$E_e^{\rho,\theta} = -\frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \frac{\rho}{m_e^\rho(\rho, z)} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{m_e^\theta(\rho, z)} \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) \quad (1.3)$$

On obtient de façon similaire $H_{eff(h)}$

V représente le potentiel de confinement de la boîte : V_e (resp. V_h) vaut 0 dans la matrice de GaAs et $-\Delta E_c$ (resp. $-\Delta E_v$) dans la boîte d'InAs : nous verrons plus loin (paragraphe 1.2.3) que ces valeurs sont dépendantes de la contrainte et de la

Niveaux	électron	trou
masse effective dans le plan	$m_e^\rho = 0.067 m_0$	$m_h^\rho = 0.11 m_0$
masse effective suivant z	$m_e^z = 0.067 m_0$	$m_h^z = 0.34 m_0$

TAB. 1.1 – Paramètres des masses effectives pour les boîtes InAs/GaAs

diffusion du gallium dans le matériau confinant. Nous utiliserons pour les masses effectives m^ρ et m^z des équations (1.2) et (1.3) celles du GaAs (voir table 1.1).

Le potentiel de confinement étant à symétrie cylindrique autour de l'axe de croissance z , les états propres de H_{eff} sont aussi états propres du moment cinétique L_z :

$$[H_{eff}, L_z] = 0 \quad (1.4)$$

On peut alors classer les fonctions d'onde suivant le nombre quantique l , valeur propre de L_z . Les différents états de symétrie seront nommés suivant la nomenclature de physique atomique : $l = 0 \rightarrow$ états S , $l = \pm 1 \rightarrow$ états P , $l = \pm 2 \rightarrow$ états D ...

Il peut (potentiel de confinement important, taille de boîte importante) exister d'autres états dans la boîte que les états cités précédemment. Nous n'en tiendrons pas compte dans la suite car loin en énergie du niveau fondamental et la considération de l'état fondamental S (état de symétrie paire), et du premier état excité de symétrie impaire P et de symétrie paire D suffit à la compréhension (et la quantification) des phénomènes étudiés dans ce manuscrit.

Pour calculer ces fonctions d'onde, nous utiliserons une méthode variationnelle : les fonctions d'essai utilisées sont de la forme :

– pour l'état S :

$$\Psi_S(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\sigma_S \beta_S^2 \pi^{3/2}}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_S^2} - \frac{(z - z_{0S})^2}{2\sigma_S^2}\right) \quad (1.5)$$

– pour les états P :

$$\Psi_{P\pm}(\vec{r}) = \frac{\rho}{\sqrt{\sigma_P \beta_P^4 \pi^{3/2}}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_P^2} - \frac{(z - z_{0P})^2}{2\sigma_P^2} \pm i\theta\right) \quad (1.6)$$

– pour les états D :

$$\Psi_{D\pm}(\vec{r}) = \frac{\rho^2}{\sqrt{2\sigma_D \beta_P^6 \pi^{3/2}}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_D^2} - \frac{(z - z_{0D})^2}{2\sigma_D^2} \pm 2i\theta\right) \quad (1.7)$$

Chacune de ces fonctions dépend de trois paramètres ajustables (β , σ et z_0) que l'on détermine en minimisant l'énergie associée à ces fonctions (calcul variationnel, voir table 1.2 pour le cas particulier de structure de bande utilisée dans le chapitre 2 : $\Delta E_c = 697$ meV, $\Delta E_v = 288$ meV[4], voir figure 1.5 page suivante et figure 1.6 page 16).

On effectue des calculs similaires pour déterminer les fonctions d'onde des trous.

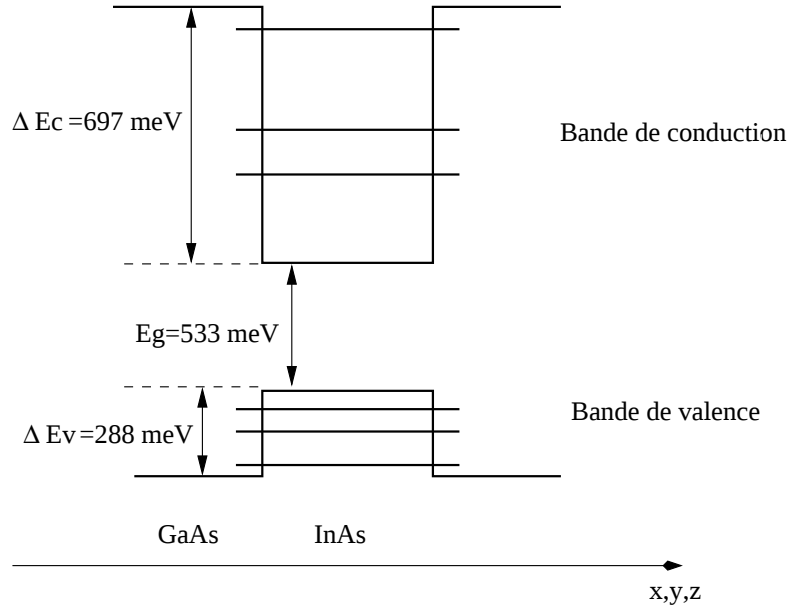


FIG. 1.5 – Structure de bande (au centre de zone) avec les paramètres de la référence[4]. Cette structure de bande est utilisée pour les calculs du chapitre 2

Pour les électrons

Niveaux	$ \Psi_S\rangle$	$ \Psi_{P_{\pm}}\rangle$	$ \Psi_{D_{\pm}}\rangle$
$\varepsilon(\text{meV})$	420	472	571
$\beta(\text{\AA})$	43.4	39.3	37.1
$\sigma(\text{\AA})$	12.8	12.9	13.4
$z_0(\text{\AA})$	5.7	5.6	6.3

Pour les trous

Niveaux	$ \Psi_S\rangle$	$ \Psi_{P_{\pm}}\rangle$	$ \Psi_{D_{\pm}}\rangle$
$\varepsilon(\text{meV})$	133	165	219
$\beta(\text{\AA})$	44.9	40.8	38.4
$\sigma(\text{\AA})$	9.6	9.7	9.7
$z_0(\text{\AA})$	5.7	5.5	6.2

TAB. 1.2 – Paramètres des fonctions d'onde pour $R = 100 \text{ \AA}$ et $h = 15 \text{ \AA}$ en haut pour les électrons et en bas pour les trous. L'énergie ε est prise par rapport au bas de la bande de conduction de l'InAs pour les électrons et par rapport au haut de la bande de valence pour les trous (voir la figure 1.5)

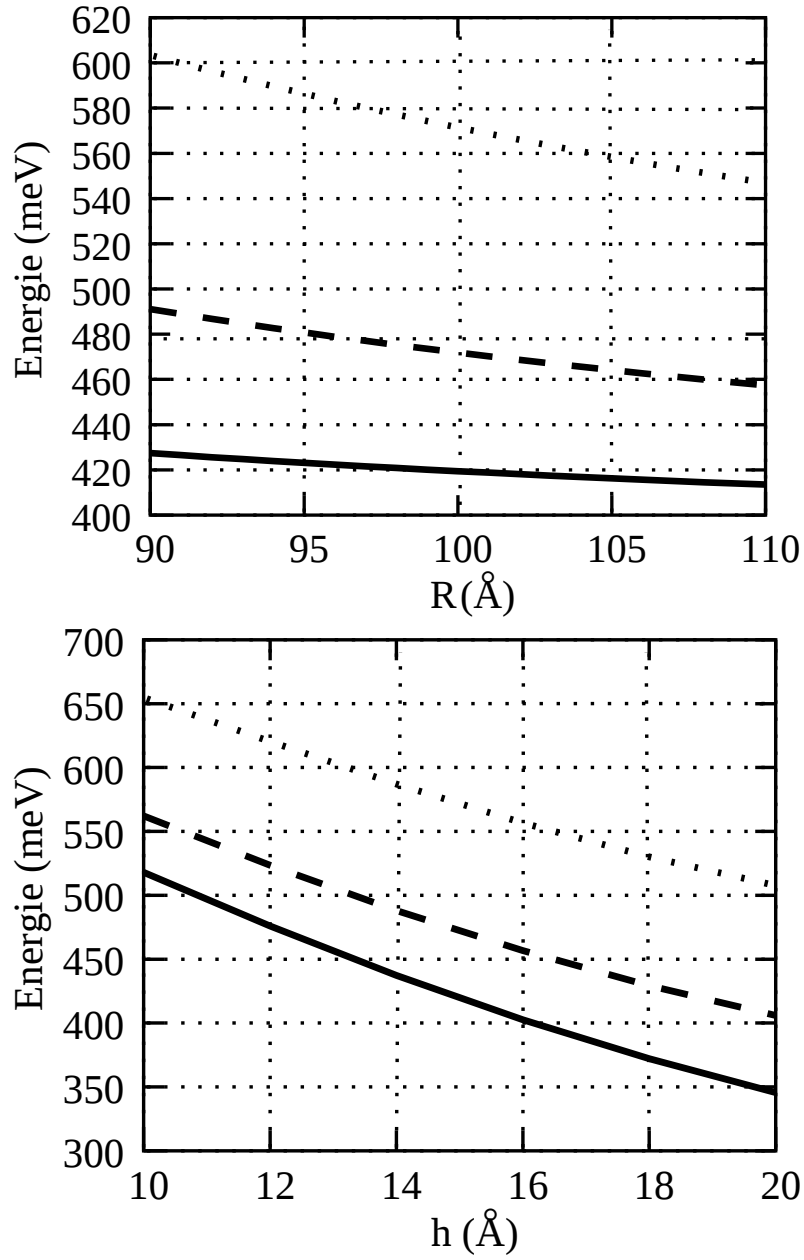


FIG. 1.6 – Détermination des niveaux d'énergie des trois premiers états (Ψ_S en trait plein, Ψ_P en tiret, Ψ_D en pointillés) de l'électron en fonction du rayon R à hauteur h fixée à 15 Å en haut, en fonction de la hauteur h à rayon fixé à 100 Å en bas. L'origine des énergies est prise par rapport à l'extremum correspondant (bande de conduction ou de valence) de l'InAs (cf figure 1.5 page précédente)

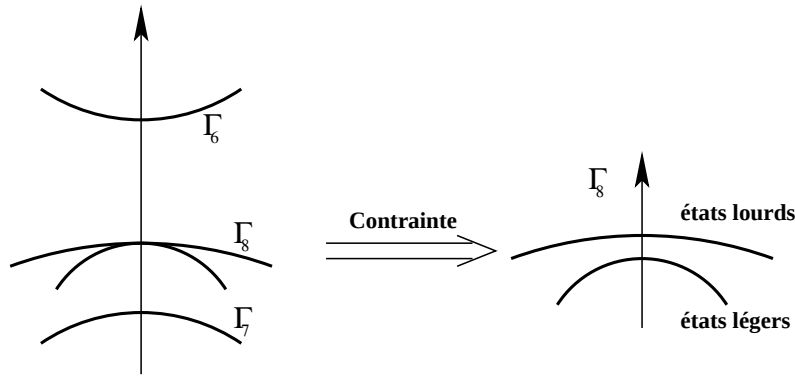


FIG. 1.7 – Structure de bande du matériaux III-V au voisinage du centre de zone : dispersion pour le massif à gauche et effet d'une contrainte biaxiale (en compression) sur la bande Γ_8 à droite

Les fonctions de Bloch (fonction u)

La bande Γ_6 , relative aux électrons de conduction (bande de conduction), est caractérisée par une partie orbitale à symétrie S .

$$\begin{array}{|c|c|} \hline \hline iS & \uparrow \\ \hline iS & \downarrow \\ \hline \hline \end{array}$$

Deux types d'excitations existent pour les états de la bande de valence Γ_8 : les états lourds et les états légers (voir figure 1.7). Leurs états atomiques sont à symétrie orbitale P (X, Y, Z).

Pour les états lourds :

$$\begin{array}{|c|c|} \hline \hline \frac{1}{\sqrt{2}}|X + iY\rangle & \uparrow \\ \hline \frac{1}{\sqrt{2}}|X - iY\rangle & \downarrow \\ \hline \hline \end{array}$$

Pour les états légers :

$$\begin{array}{|c|c|} \hline \hline -\sqrt{\frac{2}{3}}|Z\rangle & \downarrow - \frac{1}{\sqrt{6}}|X - iY\rangle & \uparrow \\ \hline -\sqrt{\frac{2}{3}}|Z\rangle & \uparrow + \frac{1}{\sqrt{6}}|X + iY\rangle & \downarrow \\ \hline \hline \end{array}$$

Dans la suite, nous ne tiendrons pas compte de la bande Γ_7 (de moment angulaire total $\frac{1}{2}$). De plus, le matériau d'InAs étant contraint (voir figure 1.7), la dégénérescence lourd - léger est levée et la bande légère est rejetée loin de la bande lourde[4]. Par conséquent, nous nous limiterons à la prise en compte des états lourds seuls car plus proches en énergie de la bande de conduction.

Par la suite, on adoptera plutôt la notation standard en fonction du moment angulaire total J et de sa projection J_z suivant l'axe z (voir table 1.3 où l'on présente, pour référence, l'ensemble des 8 états Γ_6 , Γ_7 et Γ_8)[3]

Fonction de Bloch	$ J, m_J\rangle$	u_i
$ iS\rangle \uparrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \uparrow\rangle$	u_1
$-\sqrt{\frac{2}{3}} Z\rangle \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{6}} X + iY\rangle \downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	u_3
$\frac{1}{\sqrt{2}} X + iY\rangle \uparrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	u_5
$\frac{1}{\sqrt{3}} X + iY\rangle \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} Z\rangle \uparrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	u_7
$ iS\rangle \downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, \downarrow\rangle$	u_2
$-\sqrt{\frac{2}{3}} Z\rangle \downarrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{6}} X - iY\rangle \uparrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	u_4
$\frac{1}{\sqrt{2}} X - iY\rangle \downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	u_6
$-\frac{1}{\sqrt{3}} X - iY\rangle \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} Z\rangle \downarrow\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	u_8

TAB. 1.3 – Fonctions de Bloch des bandes Γ_6 , Γ_7 , Γ_8 . La notation J, m_J fait référence aux valeurs propres des opérateurs J , J_z du moment angulaire total et de sa projection suivant l'axe z

1.2.3 Discontinuité de bande

Les expériences de caractérisation des boîtes (Transmission Electron Microscopy, Scaling Tunneling Microscopy, etc) ne fournissent pas de renseignements très fiables sur le potentiel de confinement des boîtes.

Des effets comme l'interdiffusion ou la contrainte interviennent : il est alors très difficile de connaître précisément les dimensions et la composition des boîtes. Il a été montré qu'un bon accord peut être obtenu avec de nombreuses expériences (capacité, magnéto-absorption, PL) en considérant un potentiel de confinement uniforme dans la boîte[5, 6]. Pour une boîte d'InAs pure[4], la valeur du potentiel effectif pour les électrons est $\Delta E_c = 697$ meV et pour les trous, $\Delta E_v = 288$ meV. D'autres auteurs, notamment Stier *et al.*[7] déterminent pour le potentiel de confinement des électrons une valeur différente : $\Delta E_c = 413$ meV. Cette valeur prend en compte des effets de contrainte, discutés dans la suite.

1.2.4 Contraintes

Déformations élastiques dans les matériaux pseudomorphiques[8]

Pour exprimer la déformation uniforme d'un cristal sous l'effet d'une contrainte, considérons un repère orthonormé défini par trois vecteurs $\vec{a}_x$, $\vec{a}_y$, $\vec{a}_z$ liés au solide non déformé (voir la figure 1.8 page suivante). Après une déformation supposée assez petite pour rester dans le domaine élastique, ces trois vecteurs changent d'orientation et de longueur. On exprime leurs nouvelles valeurs $\vec{a}'_i$ dans le repère initial en fonction des coefficients sans dimension ϵ_{ij} ((i,j) ∈ [x,y,z]²), en posant :

$$\vec{a}'_i - \vec{a}_i = \epsilon_{ix}\vec{a}_x + \epsilon_{iy}\vec{a}_y + \epsilon_{iz}\vec{a}_z \quad (1.8)$$

La relation entre contrainte et déformation du réseau cristallin est déduite des

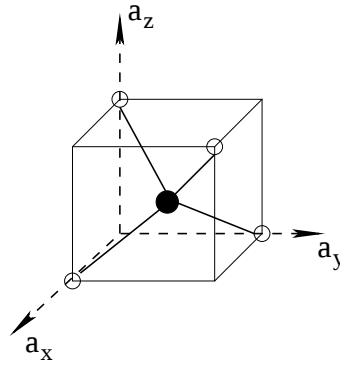
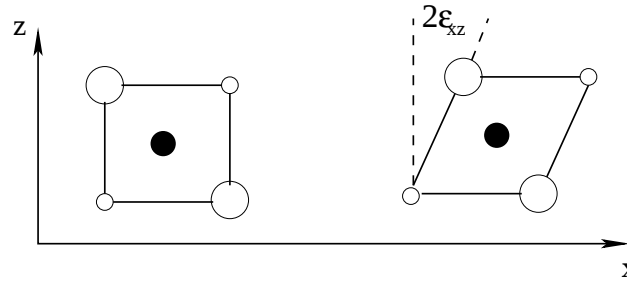


FIG. 1.8 – Motif élémentaire de la structure zinc-blende


 FIG. 1.9 – Déformation du type ϵ_{xz}

modules d'élasticité par la loi de Hooke :

$$\sigma_{ij} = \sum C_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (1.9)$$

où σ_{ij} est la composante de contrainte qui représente la force appliquée dans la direction $\vec{a}_i$ sur une surface unitaire perpendiculaire à la direction $\vec{a}_j$.

Les déformations du type ϵ_{xx} , ϵ_{yy} ou ϵ_{zz} représente un changement de longueur dans les directions x , y et z alors que les déformations notées ϵ_{xy} , ϵ_{yz} ou ϵ_{xz} représentent des variations d'angle entre les directions x et y , y et z ou x et z (figure 1.9).

Le tenseur des contraintes peut alors se décomposer en deux partie :

– la composante hydrostatique :

$$\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}$$

qui représente un changement de volume,

– la composante de cisaillement :

$$2\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx} - \epsilon_{yy} \quad \text{et} \quad \epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}$$

qui représentent le cisaillement tétragonal,

$$\epsilon_{xy}, \epsilon_{yz}, \text{ et } \epsilon_{xz}$$

qui représente le cisaillement trigonal.

Hamiltonien des contraintes de Pikus et Bir

Le tenseur de déformation est représenté par une matrice 3×3 ϵ définit pour des déplacements infinitésimaux et son inclusion dans l'hamiltonien $\vec{k} \cdot \vec{p}$ est basée sur l'hypothèse des petites déformations.

L'hamiltonien s'écrit alors :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\epsilon=0} + \mathcal{H}_{\epsilon} \quad (1.10)$$

Cas de la bande de conduction

$$\mathcal{H}_{\epsilon}^c = a_c(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \quad (1.11)$$

où a_c représente le potentiel de déformation hydrostatique de la bande de conduction.

Cas de la bande de valence

Dans la base $u_5, u_3, u_4, u_6, u_7, u_8$ (voir table 1.3) :

$$\mathcal{H}_{\epsilon}^v = \begin{pmatrix} P_{\epsilon} + Q_{\epsilon} & -S_{\epsilon} & R_{\epsilon} & 0 & -S_{\epsilon}/\sqrt{2} & \sqrt{2}R_{\epsilon} \\ -S_{\epsilon} & P_{\epsilon} - Q_{\epsilon} & 0 & R_{\epsilon} & -\sqrt{2}Q_{\epsilon} & \sqrt{3/2}S_{\epsilon} \\ R_{\epsilon} & 0 & P_{\epsilon} - Q_{\epsilon} & S_{\epsilon} & \sqrt{3/2}S_{\epsilon} & \sqrt{2}Q_{\epsilon} \\ 0 & R_{\epsilon} & S_{\epsilon} & P_{\epsilon} + Q_{\epsilon} & 0 & -S_{\epsilon}/\sqrt{2} \\ -S_{\epsilon}/\sqrt{2} & -\sqrt{2}Q_{\epsilon} & \sqrt{3/2}S_{\epsilon} & 0 & P_{\epsilon} & 0 \\ \sqrt{2}R_{\epsilon} & \sqrt{3/2}S_{\epsilon} & \sqrt{2}Q_{\epsilon} & -S_{\epsilon}/\sqrt{2} & 0 & P_{\epsilon} \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

où

$$P_{\epsilon} = -a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \quad (1.13)$$

$$Q_{\epsilon} = -\frac{b}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) \quad (1.14)$$

$$R_{\epsilon} = -\frac{\sqrt{3}b}{2}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) - id\epsilon_{xy} \quad (1.15)$$

$$S_{\epsilon} = -d(\epsilon_{xz} - i\epsilon_{yz}) \quad (1.16)$$

a_v représente le potentiel de déformation hydrostatique de la bande de valence, b et d sont respectivement les potentiels de déformation de cisaillement tétragonale et rhomboédrique (voir table 1.4)¹.

Structure de bande

Les contraintes ont pour effet de modifier la position en énergie des bandes de valence et de conduction et par conséquent l'énergie de gap de l'InAs et donc l'énergie de confinement des particules dans l'InAs. La valeur de ce potentiel de déformation

¹Ces valeurs sont à prendre avec précautions car issues de mesures indirectes

	a_c (eV)	a_v (eV)	b (eV)	d (eV)
GaAs	-7.17	1.16	-1.60	-4.23
InAs	-5.08	1.00	-1.80	-3.10

TAB. 1.4 – Potentiel de déformation[10]

est difficile à déterminer expérimentalement puisque les mesures sont essentiellement indirectes.

Le décalage induit par les contraintes sur le gap à $\vec{k} = \vec{0}$ en résolvant l'hamiltonien de contrainte de Pickus et Bir (dans la base $\vec{x} = [1\bar{1}0]/\sqrt{2}$, $\vec{y} = [110]/\sqrt{2}$, $\vec{z} = [001]$) est[9] :

– Pour la bande de conduction :

$$\delta E_c = a_c(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \quad (1.17)$$

– Pour les bandes de valence :

$$\delta E_v^\pm = a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \pm \frac{1}{2}\sqrt{A + B} \quad (1.18)$$

où

$$A = b^2[(2\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx} - \epsilon_{yy})^2 + 12\epsilon_{xy}^2] \quad (1.19)$$

$$B = d^2[(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy})^2 + 4\epsilon_{zx}^2 + 4\epsilon_{zy}^2] \quad (1.20)$$

δE_v^+ correspond aux états lourds et δE_v^- aux états légers pour des contraintes essentiellement tétraogonales.

La contrainte hydrostatique affecte directement la valeur du gap du matériau via les potentiel de déformation a_c et a_v tandis que la contrainte de cisaillement n'affecte que la bande de valence et lève la dégénérescence en $\vec{k} = \vec{0}$ entre la bande lourde et la bande légère.

1.2.5 Matériaux $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

Lorsque le matériau étudié n'est pas pur (diffusion de Ga dans la boîte au cours de la croissance), le gap $E_g(x)$ du matériau $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ non-contraint considéré est modifié et suit la loi donnée dans la référence[11] par :

$$E_g(x) = 1518 - 1580x + 475x^2 \quad (1.21)$$

A cet effet d'alliage sur la bande interdite vient s'additionner l'effet de contrainte, qui est maximum pour $x = 1$ et s'annule pour $x = 0$.

1.2.6 Anisotropie de forme traitée comme une perturbation Hamiltonien perturbatif

Dans le modèle considéré jusqu'ici (cône tronqué à symétrie cylindrique), les deux états $|\Psi_{P+}\rangle$ et $|\Psi_{P-}\rangle$ étaient dégénérés. Or, expérimentalement, on observe une

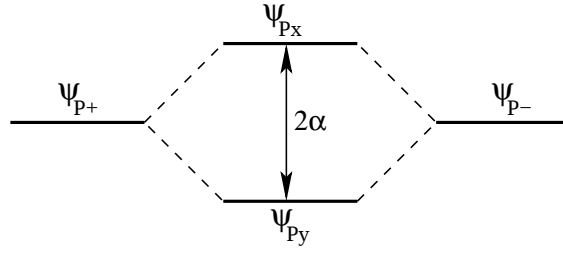


FIG. 1.10 – Schéma des nouveaux niveaux électroniques des états P

séparation de quelques meV entre ces deux niveaux d'électron[13]. Cette observation a été attribuée à l'influence d'un potentiel à symétrie D comme celui créé par une anisotropie géométrique de la boîte[13, 14].

Supposons maintenant que les boîtes quantiques sont des cônes tronqués à base légèrement elliptique. Notons a le demi grand axe de l'ellipse à la base, b le demi petit axe, h la hauteur et $\theta = 30^\circ$ à la base (voir figure 1.11 page suivante). Enfin, prenons $R_m = \sqrt{ab}$ le rayon moyen de l'ellipse. Supposons que cette ellipticité est petite, c'est-à-dire que si l'on note :

$$\frac{a^2}{b^2} = 1 + \varepsilon, \quad \text{on a :} \quad \varepsilon \ll 1 \quad (1.22)$$

Au premier ordre en ε , l'équation du cône s'écrit :

$$z = \tan \theta \left[R_m - \rho \left(1 - \frac{\varepsilon}{4} \cos(2\theta) \right) \right] \quad (1.23)$$

Nous allons dans un premier temps traiter cette ellipticité comme une perturbation par rapport au cas circulaire. En développant le potentiel de confinement par rapport au potentiel d'un cône à base circulaire de rayon $R_m = \sqrt{ab}$, on obtient :

$$\Delta V_{anis} = -\varepsilon \frac{V_0 \tan \theta}{4} \rho \cos(2\theta) \delta(z - z_{circ}(\rho)) H(z) H(h - z) \quad (1.24)$$

où δ représente la fonction de Dirac, H la fonction de Heavyside, et où $z_{circ}(\rho) = \tan \theta (R_m - \rho)$ est l'équation du cône à base circulaire.

Détermination des nouveaux états dû à l'anisotropie

L'hamiltonien précédent va introduire un couplage entre les états $|\Psi_{P+}\rangle$ et $|\Psi_{P-}\rangle$ et les nouveaux états propres sont :

$$|\Psi_{Px}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\Psi_{P+}\rangle + |\Psi_{P-}\rangle) = \Psi_P \cos(\theta) \quad (1.25)$$

$$|\Psi_{Py}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}i} (|\Psi_{P+}\rangle - |\Psi_{P-}\rangle) = \Psi_P \sin(\theta) \quad (1.26)$$

où $\Psi_P \propto \rho \exp(-\rho^2/2\beta_P^2)$

Ces deux nouveaux états sont séparés par une énergie 2α (voir la figure 1.10)

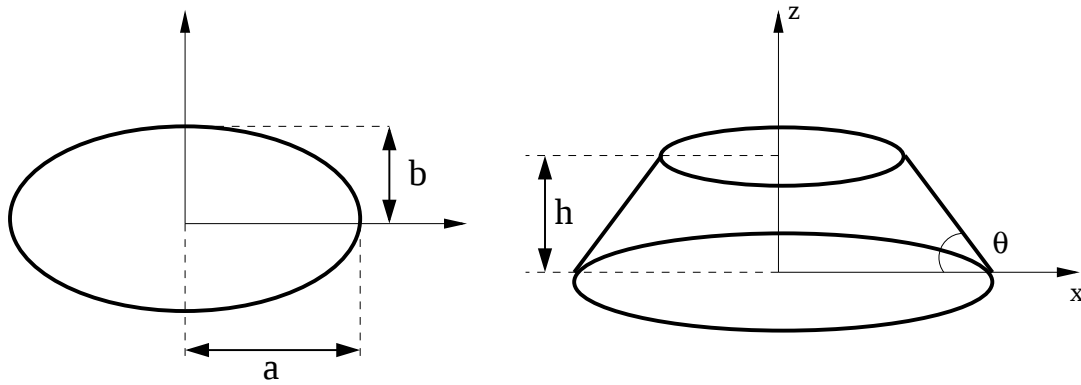


FIG. 1.11 – Modélisation

$$\alpha = |\langle \Psi_{P_+} | \Delta V_{anis} | \Psi_{P_-} \rangle| \quad (1.27)$$

Cet hamiltonien va aussi introduire un couplage entre les états $|\Psi_S\rangle$ et $|\Psi_{D_\pm}\rangle$.

Dans la suite, on notera :

$$|\Psi_{D_x}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Psi_{D_+}\rangle + |\Psi_{D_-}\rangle) = \Psi_D \cos(2\theta) \quad (1.28)$$

$$|\Psi_{D_y}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}i}(|\Psi_{D_+}\rangle - |\Psi_{D_-}\rangle) = \Psi_D \sin(2\theta) \quad (1.29)$$

où $\Psi_D \propto \rho^2 \exp(-\rho^2/2\beta_D^2)$.

Les notations Ψ_{P_x} et Ψ_{P_y} sont claires pour les états P . Elles peuvent prêter à confusion pour les états D . On gardera néanmoins Ψ_{D_x} et Ψ_{D_y} pour désigner respectivement les états de symétrie $D_{x^2-y^2}$ et D_{xy} , pour des raisons de simplicité.

1.2.7 Anisotropie : calcul variationnel

Modélisation de la boîte

Pour le calcul variationnel des états électroniques dans le cas d'une boîte elliptique, nous allons effectivement modéliser la boîte comme un cône tronqué reposant sur une couche bidimensionnelle ($d = 3.33 \text{ \AA}$) la base de la boîte est elliptique, de demi-grand axe a et de demi-petit axe b (voir la figure 1.11).

La section du cône avec le plan perpendiculaire à la base contenant le grand axe, fait un angle θ fixé à 30° et la proportion $\frac{a}{b}$ reste constante pour chaque section du cône avec un plan perpendiculaire à l'axe de croissance.

Fonction d'essai et paramètres variationnel

Pour l'état fondamental à une particule de l'électron et du trou, on va prendre une fonction d'essai du type :

$$\Psi_{fond}(x, y, z) = N_f e^{-\frac{x^2}{2\beta_x^2}} e^{-\frac{y^2}{2\beta_y^2}} e^{-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}} \quad (1.30)$$

Cette fonction dépend de 4 paramètres ajustables : z_0 et σ_z caractérisent la position et l'extension de la fonction d'onde suivant l'axe de croissance ; β_x et β_y caractérisant une ellipse respectivement suivant les axes $O\vec{x} = [1\bar{1}0]$ et $O\vec{y} = [110]$ (axes principaux de l'anisotropie, voir figure 1.4 page 13).

L'indépendance des deux extensions suivant les axes $O\vec{x}$ et $O\vec{y}$ nous permettra de traiter l'anisotropie de manière variationnelle (chapitre 4.)

Nous avons vu précédemment que l'anisotropie couple l'états S à l'état D_x ; par un calcul en perturbation (à l'ordre 1), l'état fondamental devient un état S avec une contribution D_x :

$$\Psi_{fond} \approx \alpha \Psi_S + \gamma \Psi_D \cos(2\theta) \quad (1.31)$$

Un développement limité à l'ordre 1 en $\eta = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\beta_x^2} - \frac{1}{\beta_y^2} \right)$ ($\ll 1$ pour une boîte peu elliptique, car les direction x et y sont peu différentes) de la fonction d'onde de l'équation (1.31) nous donne :

$$\Psi_{fond} \approx N_f e^{-\frac{\rho^2}{\beta^2}} \left[1 - \rho^2 \eta \cos(2\theta) \right] \quad (1.32)$$

$$\text{où } \frac{1}{\beta^2} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\beta_x^2} + \frac{1}{\beta_y^2} \right)$$

Le premier terme de l'expression entre crochet engendre un état S et le second un état D_x .

Remarque

Le développement aux ordres supérieurs de l'équation du cône (1.25) est pris en compte dans la fonction d'onde (1.31) car le développement limité de cette fonction aux ordres supérieurs fournit les termes négligés dans l'expression (1.24) de l'équation du cône (couplage de l'état S aux autres états de symétrie paire).

1.2.8 Champ électrique dans le plan

Effets du champ électrique

Au cours de cette thèse, nous allons nous intéresser à l'influence d'un champ électrique latéral sur les propriétés optiques des boîtes.

En présence d'un champ $\vec{F}$, l'hamiltonien s'écrit alors sous la forme :

$$\mathcal{H}_{champ} = \mathcal{H}_0 - q\vec{F}\vec{\rho} \quad (1.33)$$

où $\mathcal{H}_0$ est l'hamiltonien l'absence de champ électrique, $e > 0$ est la charge de l'électron : $q = -e$ correspond à l'influence du champ sur les électrons et $q = +e$ à celui sur les trous.

Le champ va alors coupler les états S aux états P , les états P aux états D et ainsi de suite si on prenait en compte les états de moment cinétique supérieur : un état de moment cinétique l va être couplé aux états de moment cinétique $l \pm 1$.

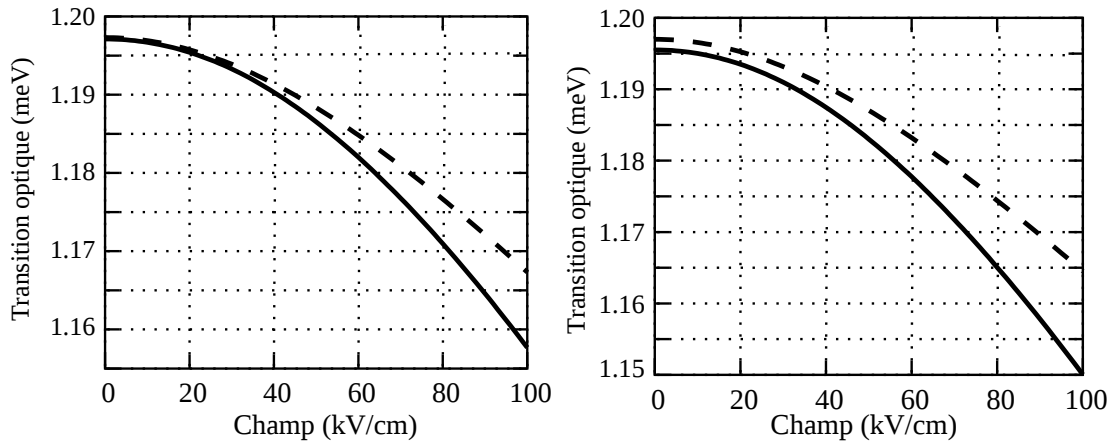


FIG. 1.12 – Comparaison des énergies de transition de la paire électron trou par le calcul variationnel à l'aide de la fonction d'onde (1.35) en trait plein et par le calcul en perturbation sur la base des 25 paires électron-trous de la figure 1.13 page 28 en tiret, pour une boîte ronde ($\epsilon = 0$) à gauche et pour une boîte elliptique ($\epsilon=0.2$) à droite ($R_m = 100 \text{ \AA}$, $h = 25 \text{ \AA}$, $\Delta E_c = 450 \text{ meV}$, $\Delta E_v = 200 \text{ meV}$, paramètres de calculs du chapitre 4)

Champ électrique, anisotropie et calcul variationnel

On reprend la fonction d'onde variationnelle de l'équation (1.31), à laquelle on rajoute le paramètre variationnel x_0 qui tiend compte de l'effet de séparation électron-trou imposé par la présence du champ et donc de la diminution du recouvrement des fonctions d'onde résultant.

$$\Psi_{fond}(x, y, z) = N.e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2\beta_x^2}} e^{-\frac{y^2}{2\beta_y^2}} e^{-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}} \quad (1.34)$$

L'hamiltonien est alors, en coordonnées cartésienne (pour les électron (+) et les trous (-)) :

$$\mathcal{H}_{boite} = E_c \pm eFx + V_{boite}(x, y, z) \quad (1.35)$$

où

$$E_c = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \quad (1.36)$$

Cette fonction d'onde va nous permettre de traiter variationnellement la structure fine de la paire électron-trou de la boîte en tenant compte de la superposition du champ et de l'anisotropie (chapitre 4).

La figure 1.12 montre que cette fonction d'onde est mieux adaptée (énergie plus faible) pour l'étude de la superposition de l'anisotropie et du champ (dans la direction $0\vec{x}$ à cause du paramètre x_0) que l'utilisation de la base sur les états de la boîte ronde d'un modèle bande à bande.

$\epsilon_r(\mathbf{x})$	
$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	$14.5x + 12.4(1-x)$

TAB. 1.5 – Valeur de la constante diélectrique[12]. Dans les calculs de cette thèse, on prendra la valeur du GaAs pur $\epsilon_r = 12.4$

1.2.9 Remarques sur la paire électron-trou

Dans la suite, les excitations optiques seront à l'origine de la création d'une paire électron-trou dans la boîte. Un traitement correct de cette paire doit tenir compte du terme d'interaction Coulombienne V_c entre l'électron et le trou

$$V_c = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \quad (1.37)$$

ϵ_r étant la constante diélectrique du semiconducteur (voir la table 1.5).

Puisque les boîtes obtenues par croissance auto-organisée conduisent à un régime de confinement fort, le terme d'interaction coulombienne peut être traité comme une perturbation (voir[12]).

Le potentiel coulombien va mélanger les états se trouvant dans la même collection (voir Annexe A.) :

$$\begin{aligned} \text{I. } & \{ |\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}}\Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}}\Psi_{D_{y_h}}\rangle; \\ & |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}}\Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}}\Psi_{D_{x_h}}\rangle \\ & |\Psi_{S_e}\Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{S_e}\Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}}\Psi_{S_h}\rangle \} \\ \text{II. } & \{ |\Psi_{S_e}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle \} \\ \text{III. } & \{ |\Psi_{S_e}\Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; \} \end{aligned}$$

Les états se trouvant dans des collections différentes ne se couplent qu'en présence d'une perturbation extérieure.

Dans un premier temps, nous allons négliger l'influence de l'interaction Coulombienne dans les calculs puis nous en tiendrons compte au chapitre 4 lorsque l'on traitera la structure fine de l'exciton.

1.3 Couplage avec la lumière

1.3.1 Hamiltonien de couplage

L'hamiltonien des électrons en présence d'un champ électromagnétique s'écrit (voir[18]) :

$$H = \frac{1}{2m_0}(\vec{p} - e\vec{A}(\vec{r}))^2 + V(\vec{r}) \quad (1.38)$$

où $\vec{A}$ représente le potentiel vecteur associé à l'onde électromagnétique et V le couplage de l'électron au réseau cristallin.

Dans la jauge de Coulomb et en négligeant le terme en A^2 , l'hamiltonien s'écrit alors

$$H = H_0 + H_e + V(\vec{r}) \quad (1.39)$$

avec

$$H_0 = \frac{p^2}{2m^*}; H_e = -e \frac{\vec{A} \cdot \vec{p}}{m^*} \quad (1.40)$$

On peut aussi montrer[19] que dans le cas où le vecteur d'onde de l'onde électromagnétique est faible, H_e est équivalent à :

$$H_e = -e \vec{r} \cdot \vec{E} \quad (1.41)$$

C'est l'approximation dipolaire électrique.

1.3.2 Transitions optiques

L'évolution d'un état électronique excité couplé au vide électromagnétique est décrit par la règle d'or de Fermi, qui donne la probabilité pour le système de passer de façon irréversible de l'état discret (dipôle électronique excité et champ dans son état fondamental) vers un état du continuum (dipôle dans son état fondamental et un photon). Cette évolution irréversible de l'état discret vers un état du continuum, avec un temps caractéristique τ_r , se traduit par un élargissement radiatif de la transition Γ_r . Cet élargissement Γ_r est proportionnel au module carré de l'élément de matrice dipolaire électrique entre l'état initial $|\Phi_i\rangle$ de l'électron et son état final $|\Phi_f\rangle$ après avoir absorbé un photon :

$$\Gamma_r = \frac{1}{\tau_r} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Phi_f | V | \Phi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (1.42)$$

où $\hbar\omega$ désigne l'énergie d'un photon, E_i (resp. E_f) représente l'énergie de l'état initial (resp. l'état final) et $V \propto \hat{e} \cdot \vec{p}$ est le terme dipolaire électrique.

L'absorption interbande est plus délicate à traiter, à cause de la nature discrète des niveaux excitoniques. Toutefois, dans la limite de très faible excitation (couplage dipolaire $\ll \Gamma_r + \Gamma_{nr}$, Γ_r étant l'élargissement radiatif (1.42) et Γ_{nr} l'élargissement non radiatif), on peut évaluer la probabilité d'absorption, que l'on assimilera au spectre d'absorption.

L'élément de matrice entre l'état Φ_i et l'état Φ_f , présente deux termes :

$$\langle \Phi_i | \hat{e} \cdot \vec{p} | \Phi_f \rangle \approx \langle u_f | \hat{e} \cdot \vec{p} | u_i \rangle \langle \Psi_f | \Psi_i \rangle + \langle \Psi_f | \hat{e} \cdot \vec{p} | \Psi_i \rangle \delta_{if} \quad (1.43)$$

– Un terme responsable des transitions intrabandes

$$\langle \Psi_f | \hat{e} \cdot \vec{p} | \Psi_i \rangle \delta_{if} \quad (1.44)$$

ici, les fonctions de Bloch entre l'état initial et l'état final sont identiques.

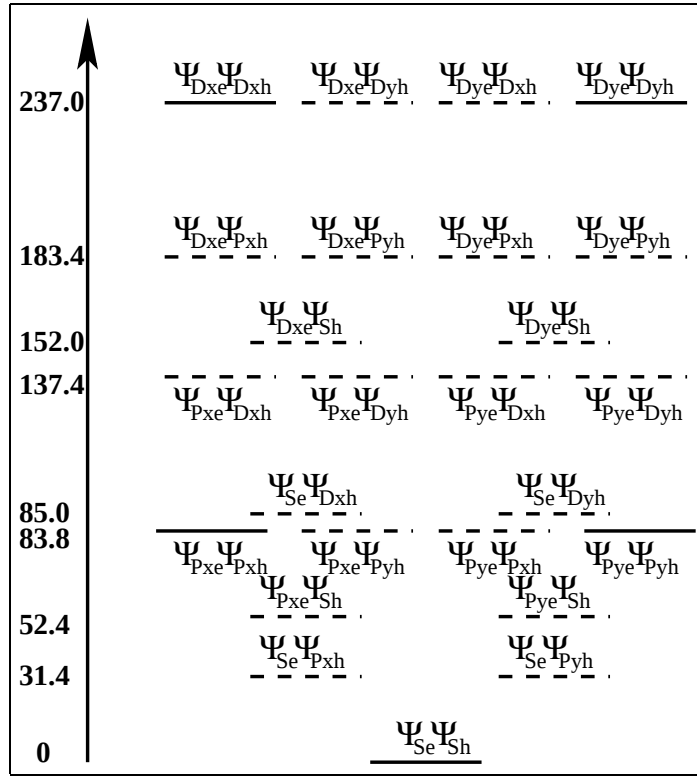


FIG. 1.13 – Niveau énergétique des différentes paires électron-trou décorréliées pour une boîte de rayon moyen $R_m = 100 \text{ \AA}$, de hauteur $h = 15 \text{ \AA}$ et de paramètre de confinement $\Delta E_c = 697 \text{ meV}$, $\Delta E_v = 288 \text{ meV}$ (en trait plein états optiquement actifs et en tiret états non radiatifs; sélection sur la fonction enveloppe) : ces états vont constituer une base de travail pour le chapitre 4

Seule la matrice de transition entre les fonctions enveloppe compte.

– Un terme responsable des transitions interbandes

$$\langle u_f | \hat{\epsilon} \cdot \vec{p} | u_i \rangle \langle \Psi_f | \Psi_i \rangle \quad (1.45)$$

ces transitions font passer un électron d'un état de la bande de valence vers un état de la bande de conduction.

Ce sont les termes de (1.45) faisant intervenir les fonctions de Bloch (différentes entre l'état initial et l'état final) qui vont donner les règles de sélection pour la polarisation de la lumière émise et pour le spin des états de paire impliqués. Le recouvrement des fonctions enveloppes exercera aussi une règle de sélection sur l'activité optique des différentes transitions possibles; les seules transition interbandes optiquement actives sont alors celles entre états de même symétrie (voir [12] et figure 1.13))

Transition bande à bande

Dans cette thèse, nous nous limiterons à l'étude des transitions interbandes qui dans le cadre d'un formalisme électron-trou peuvent être vues comme la transition de l'état fondamental du système (pas d'électron dans la bande de conduction, pas de trou) $|0\rangle$ (le vide) vers un état avec un électron dans l'état $|\Psi_e\rangle$ et un trou dans l'état $|\Psi_h\rangle$. La règle de sélection sur les fonctions enveloppes nous conduit à nommer les transitions optiquement actives par la symétrie des états mis en jeu : transition S pour la transition $\Psi_{S_e} \rightarrow \Psi_{S_h}$... (voir la figure 1.13 page précédente)

Règle de sélection dipolaire pour les transitions bande à bande

Notons $J = J_e + J_h$ le moment cinétique total de la paire électron-trou. Lorsque le système présente un axe de symétrie (axe de révolution), la projection de $\vec{J}$ suivant cet axe est également un bon nombre quantique. C'est le cas d'une boîte 'cylindrique' (voir les paragraphes 1.2.1 et 1.2.2). Notons n_{paire} les valeurs prises par $J_z = J_{ze} + J_{zh}$. Dans ce cas, l'interaction dipolaire avec la lumière est gouvernée par la règle de sélection simple qui est la conservation de la projection du moment total :

$$n_{paire} = \sigma_{photon} \quad (1.46)$$

où σ_{photon} est le moment cinétique angulaire du photon. Cette équation signifie que le moment cinétique de la paire électron-trou est cédé au photon émis lors de la recombinaison.

Pour les transitions lourdes $n_{paire} = \pm 1$, les photons émis le long de l'axe de croissance sont donc polarisés circulairement à gauche et à droite. De plus, les deux transitions $n_{paire} = \pm 1$ ont la même force d'oscillateur. Finalement, il y a un lien direct entre état de spin des états luminescents et état de polarisation de la lumière émise, à cause de (1.46) (figures 1.14 page suivante).

Pour une boîte allongée, par contre, la symétrie est réduite et J_z n'est plus un bon nombre quantique. Toutefois, les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ (qui portent le grand et petit axes de l'ellipse) restent des directions privilégiées. La lumière émise par la boîte reflète cette anisotropie, sous la forme double d'une lumière polarisée linéairement suivant l'une ou l'autre des ces deux directions orthogonales, et avec des forces d'oscillateurs différentes. Une telle anisotropie apparaît lorsque l'on décrit plus finement les états de valence, pour prendre en compte les couplages lourd-léger (pur effet de structure de bande) intrinsèques aux dispersions des matériaux massifs formant la nanostructure.

Dans le cas de l'InAs contraint (discuté dans le paragraphe 1.2.4) les niveaux légers sont éloignés des lourds, et donc cet effet de mélange sera affaibli dans les boîtes quantiques (pas nécessairement pour les boîtes d' 'interface', pour lesquelles le confinement des trous est faible). On montrera dans le chapitre 4 qu'une description fine des seuls états excitoniques lourds et des couplages coulombien et dipolaire permet également de prévoir l'existence d'une telle anisotropie optique pour les transitions interbandes. On verra également dans ce chapitre qu'il n'y a plus de lien direct entre la polarisation (linéaire) des photons et l'état de spin des porteurs se recombinant.

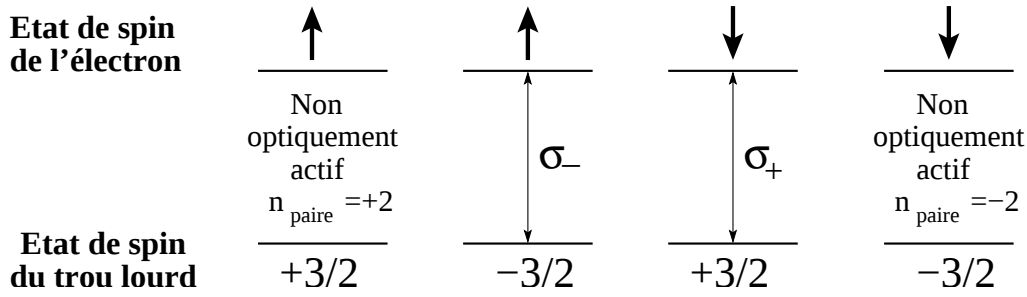


FIG. 1.14 – Activité optique des différents états de spin d'une paire électron-trou lourd

1.3.3 Elargissement homogène d'un système à deux niveaux

Tout phénomène autre que la recombinaison radiative entraînant une diminution de population de l'état excité va aussi se traduire par une augmentation de la largeur homogène[19]. La largeur homogène totale $\Gamma_{tot} = \hbar/\tau$ est alors donnée par la somme des l'élargissements radiatifs Γ_r et non radiatifs Γ_{nr} :

$$\Gamma_{tot} = \Gamma_r + \Gamma_{nr} \quad (1.47)$$

En effet, dans le cadre d'un modèle à deux niveaux pour les états électroniques (voir ci-dessous), les deux processus (disparition radiative ou non radiative de l'exciton) impliquent le retour de la boîte à son état fondamental (vide).

Cas du système à deux niveaux : notations des expérimentateurs

Le spectre énergétique des boîtes quantiques étant constitué de niveaux discrets, elle peuvent être décrites de façon simplifiée par un système à deux niveaux.

Considérons un système composé d'un niveau fondamental $|a\rangle$ d'énergie E_a et d'un niveau excité $|b\rangle$ d'énergie E_b en interaction avec un rayonnement électromagnétique (nous reprenons les notations des références[15, 19]).

On se place dans le formalisme de la matrice densité :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ba} \\ \rho_{ab} & \rho_{aa} \end{pmatrix} \quad (1.48)$$

où ρ_{aa} et ρ_{bb} représentent respectivement les populations de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ et $\rho_{ab} = \rho_{ba}^*$ les cohérences de la superposition d'états.

L'évolution de la matrice ρ est régie par l'équation de Liouville :

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] \quad (1.49)$$

$$H = H_0 + H_{int} \quad (1.50)$$

H_0 représente l'hamiltonien du système à deux niveaux

$$H_0 = \begin{pmatrix} E_b & 0 \\ 0 & E_a \end{pmatrix} \quad (1.51)$$

et H_{int} décrit l'interaction entre le champ et le système

$$H_{int} = \begin{pmatrix} 0 & \hbar\Omega_{ba} \\ \hbar\Omega_{ba}^* & 0 \end{pmatrix} \quad (1.52)$$

Dans un régime de couplage faible avec le vide électromagnétique, la probabilité que le système reste dans l'état $|b\rangle$ décroît alors en e^{-t/T_1} où T_1 est le temps de vie radiatif donné par la règle d'or de Fermi (voir équation (1.42)).

Lorsque le système considéré est en interaction avec son environnement, on peut rajouter à l'hamiltonien H une perturbation incohérente définie par H_{inc} qui dans l'approximation du temps de relaxation, est modélisée par :

$$[H_{inc}, \rho] = -i\hbar \sum_{i,j=a,b} \frac{\rho_{ij}}{T_{ij}} |i\rangle\langle j| \quad (1.53)$$

Les T_{ii} représentent les temps de vie des populations $i=a,b$: $T_{aa} = +\infty$ par définition de l'état fondamental et $T_{bb} = T_1$ est le temps de vie de l'état excité $|b\rangle$. $T_{ab} = T_{ba} = T_2$ est le temps de vie de la cohérence entre les deux états $|a\rangle$ et $|b\rangle$.

Ainsi, lorsque le système est excité, on peut définir deux temps caractéristiques d'évolution du système : le temps T_1 de retour des populations à l'équilibre et le temps T_2 de perte de cohérence.

La résolution de l'équation de Liouville par décomposition en série de Fourier donne des termes non-diagonaux de la forme :

$$\tilde{\rho}_{ab}(\omega) \propto \frac{1}{\frac{i}{T_2} + \omega - \omega_0} \quad (1.54)$$

Le moment dipolaire du système est calculé comme la trace de l'opérateur moment dipolaire $\vec{d} = -e\vec{r}$. Cet opérateur étant impair, les éléments diagonaux sont nuls, les coefficients de la décomposition en série de Fourier de la trace s'expriment uniquement en fonction des cohérences de la matrice densité : ils ont donc même forme que $\tilde{\rho}_{ab}(\omega)$ qui est une lorentzienne de largeur $\Gamma = 2\hbar/T_2$. Le moment dipolaire créé dans la boîte par l'excitation lumineuse décroît au cours du temps en e^{-t/T_2} avec T_2 le temps de perte de cohérence.

Dans le cas où tous les couplages incorporés dans H_{inc} (expression (1.53)) sont directement liés à un transfert de population du niveau $|b\rangle$ vers le niveau $|a\rangle$, on a $T_2 = 2T_1$, où $1/T_1 = \Gamma_{tot}$ (voir (1.47)).

Dans de nombreux cas, l'élargissement $2\hbar/T_2$ peut être supérieur à la limite $\hbar/T_1$. On peut alors définir un temps de déphasage pur T_2^* tel que :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (1.55)$$

Ceci est traité dans ce qui suit.

Mécanismes d'élargissement

Le système considéré peut aussi être soumis à des variations de l'environnement qui sans introduire de pertes de population, vont entraîner une perte de phase. Il

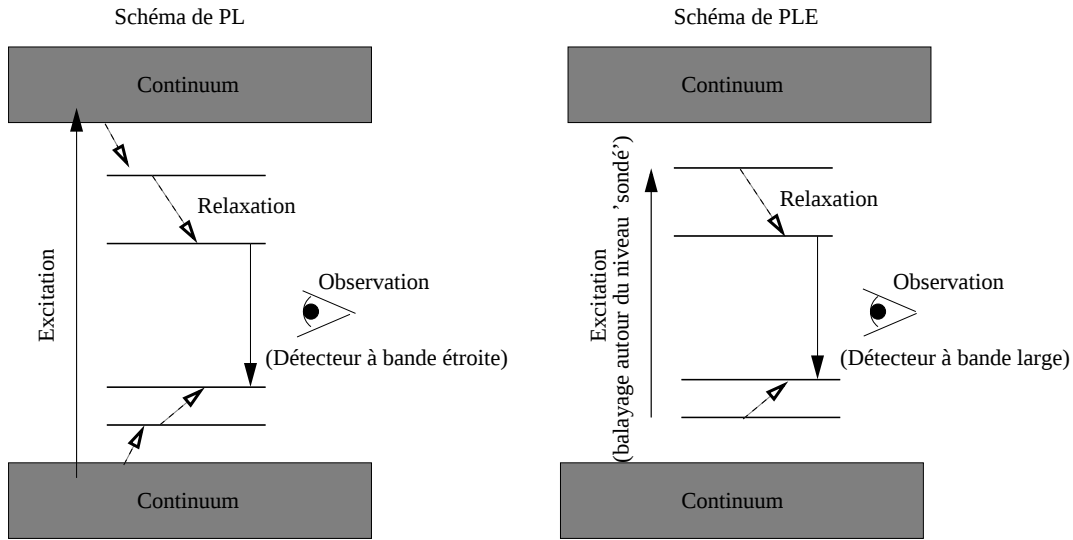


FIG. 1.15 – Schéma de principe d'une expérience de PL et de PLE

s'agit essentiellement du déphasage induit par l'interaction avec des défauts chargés, avec d'autres porteurs et avec les phonons. L'interaction avec les phonons a déjà été étudiée tant expérimentalement que théoriquement[14, 15, 17, 24].

Un des buts de cette thèse est de quantifier le déphasage introduit par l'interaction des porteurs de la boîte avec d'autres porteurs se situant dans l'environnement immédiat des boîtes.

1.4 Méthodes de mesure expérimentale

La spectroscopie optique classique, qui sonde simultanément un très grand nombre de nano-structures, ne permet d'atteindre que les propriétés moyennes d'une population de boîtes différentes : les transitions interbandes associées à de telles mesures sont alors extrêmement larges (quelques dizaines de meV). Elle ne permet pas d'exploiter pleinement les propriétés optiques de ces boîtes en raison d'une trop grande fluctuation de taille.

En mettant au point une technique de spectroscopie à haute résolution spatiale connue sous le nom de micro-photoluminescence, il est possible d'accéder aux propriétés optiques d'un nombre limité de boîtes, voire d'une boîte unique[15].

L'étude des propriétés optiques d'une seule boîte quantique offre alors une compréhension des mécanismes intrinsèques à l'origine des propriétés globales d'une population de boîtes. Elle permet aussi de comprendre et de mettre en évidence des phénomènes quantiques nouveaux susceptibles de se produire dans des dispositifs optiques de plus en plus petits.

1.4.1 Spectre de Photoluminescence

Une expérience de photoluminescence (PL) consiste à exciter un échantillon à une énergie fixée et à faire varier l'énergie de détection (voir figure 1.15). Dans la pratique,

l'énergie d'excitation est fixée à une valeur supérieure à l'énergie de bande interdite. Les photons absorbés génèrent des paires électrons-trous qui relaxent rapidement vers les niveaux d'énergie les plus bas avant de se recombiner radiativement. Grâce aux échantillon structurés en surface ou à des techniques de sonde locale, il est possible d'isoler la raie d'une boîte quantique unique.

1.4.2 Excitation de la Photoluminescence

Une expérience d'Excitation de la Photoluminescence (PLE) consiste à fixer l'énergie de détection sur une raie de photoluminescence (en général celle du pic de la transition fondamentale : transition $|S\rangle \rightarrow |0\rangle$) et à faire varier l'énergie d'excitation (voir figure 1.15 page ci-contre). L'intensité recueillie est alors fonction de l'absorption de la structure à cette même énergie. Le spectre de PLE nous permet d'avoir accès aux transitions excitées de la paire électron-trou dans les boîtes.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre d'introduction, nous avons rappelé la description des états d'électron et de trou dans une boîte quantique idéale (symétrie cylindrique du potentiel de confinement) via un calcul variationnel et discuté de l'impact de différents paramètres (contrainte, diffusion...) agissant sur ces états.

En appliquant l'image d'un atome à deux niveaux, nous avons introduit comment ces systèmes interagissent avec la lumière et leur environnement. Nous étudierons plus en détail par la suite le rôle de l'environnement électrodynamique sur ces propriétés optiques (chapitre 2 et 3).

Nous avons aussi discuté l'impact d'une anisotropie de forme sur les états de la boîte et nous verrons plus loin (chapitre 4) les conséquences optiques d'une telle anisotropie.

Chapitre 2

La boîte et son environnement

Nous avons vu que *dans une boîte quantique les électrons et les trous sont confinés dans les trois directions de l'espace, juste comme les électrons le sont dans les atomes monovalents. On en a conclu que l'on pouvait manipuler les états propres des boîtes comme les physiciens atomistes manipulent les états atomiques : intrication, q-bit, calcul quantique...*[20]

Mais cette image de la boîte quantique en tant que macro-atome est limitée comme il a pu être étudié[2, 14, 15] ces dernières années.

Au cours de ce manuscrit, nous allons tenter de quantifier le rôle joué par les porteurs de charge au voisinage de la boîte : ce chapitre nous permettra d'obtenir un ordre de grandeur de l'influence de ces porteurs sur les états de la boîte et le chapitre 3 nous permettra d'étudier l'influence de la dynamique de ces porteurs sur les spectres optiques (PL, PLE) et donc de déterminer le temps de cohérence de la boîte en vue de manipulation des états.

Nous allons dans un premier temps au cours de ce chapitre rappeler les limites du modèle du macro-atome puis nous allons ensuite déterminer le rôle joué sur les états de la boîte par les porteurs à son voisinage immédiat.

Dans tous les calculs de ce chapitre, nous allons considérer une boîte modélisée par un cône tronqué de hauteur $h = 15 \text{ \AA}$, de rayon $R = 100 \text{ \AA}$ avec un angle de 30° se trouvant sur une couche de mouillage d'épaisseur $d = 3.33 \text{ \AA}$. Le paramètre de confinement des électrons est $\Delta E_c = 697 \text{ meV}$ et pour les trous : $\Delta E_v = 288 \text{ meV}$ [4].

2.1 Mécanisme de décohérence dans les boîtes : les limites du modèle du macro-atome[20]

Dans cette section, nous proposons de rappeler brièvement différents mécanismes de décohérence des boîtes.

2.1.1 Degrés de liberté intrinsèques et extrinsèques

Contrairement à ce qui se passe dans un atome alcalin seul dans le vide où l'électron n'interagit qu'avec le champ électromagnétique et où l'élargissement est

seulement radiatif (cela implique des temps de cohérence longs), les boîtes du fait de leur caractère localisé se trouve dans un environnement qui peut influencer le temps de vie des cohérences. L'analogie avec un atome placé dans un volume fini (rôle de la surface confinante) et en présence d'atomes étrangers (rôle des collisions atomiques) serait plus réaliste, mais encore incomplète.

En effet, dans les boîtes quantiques, il existe des degrés de liberté intrinsèques associés à des excitations élémentaires propres aux systèmes de matière condensée (par exemple les vibrations du réseau, voir paragraphe 2.1.2). La désexcitation des boîtes n'est pas nécessairement exclusivement radiative mais peut être accompagnée d'un changement simultané de ces degrés de liberté intrinsèques. Ces propriétés propres du système sont une limitation qui ne peut pas être corrigée par une amélioration des techniques de croissance.

Par contre, l'amélioration de ces techniques de croissance peut conduire à diminuer les perturbations causées par les degrés de liberté extrinsèques. En effet, autour des boîtes, l'environnement électrostatique change constamment. Sous excitation optique, les impuretés résiduelles se chargent et se déchargent, perturbant une paire électron-trou de la boîte. L'énergie de la paire liée est différente suivant que l'impureté est vide ou occupée par un électron (ou un exciton). Ces perturbations aléatoires élargissent les transitions interbandes et raccourcissent le temps de vie des cohérences (section 2.2 - 2.4).

2.1.2 Couplage avec le réseau cristallin

Dans les semiconducteurs de type GaAs (à deux atomes par maille) il existe six modes de phonons différents pour chaque vecteur d'onde $\vec{q}$: trois modes acoustiques et trois autres optiques.

Les branches de dispersion acoustiques sont linéaires aux faibles vecteurs d'onde (l'énergie du phonon acoustique est égale à $\hbar c_s q$ où c_s représente la vitesse du son dans le semiconducteur) tandis que les phonons optiques ont une faible dispersion (ils sont quasi-monochromatiques et leur énergie vaut $\hbar \omega_{LO} \approx 36$ meV).

Les modes acoustiques correspondent à des vibrations en phase des deux atomes d'une maille tandis que les phonons optiques correspondent à des vibrations en opposition de phase.

Dans ce paragraphe, nous allons rappeler comment ils se manifestent dans les matériaux massifs, les puits quantiques et les fils d'une part et dans les boîtes d'autre part.

Phonons acoustiques

Systèmes 3D, 2D et 1D

Dans les matériaux massifs, les puits quantiques et les fils quantiques, les états factorisés électrons $\otimes$ phonons forment un continuum composite large (le continuum électronique est large (≈ 1 eV) et celui des phonons acoustiques est étroit (≈ 20 meV)). L'interaction électron-phonon diffuse ces états factorisés avec un temps caractéristique τ_{ph} donné par la règle d'or de Fermi :

$$\frac{1}{\tau_{ph}} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f |\langle f | H_{e-ph} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i) \quad (2.1)$$

où H_{e-ph} représente l'hamiltonien de couplage électron-phonon qui dans le formalisme de la seconde quantification s'écrit[21] :

$$H_{e-ph} = \sum_{\sigma, \vec{k}, \vec{q}} M_{\vec{k}\vec{q}} (a_{-\vec{q}}^+ + a_{\vec{q}}) c_{\vec{k}+\vec{q}, \sigma}^+ c_{\vec{k}, \sigma} \quad (2.2)$$

où les $M_{\vec{k}\vec{q}}$ représentent les éléments de matrice d'interaction, a et a^+ sont les opérateurs annihilation et création de phonons, c et c^+ ceux des électrons, $\vec{q}$ le vecteur d'onde du phonon, $\vec{k}$ celui de l'électron et σ son spin.

Dans le cas particulier des systèmes 2D étudiés dans la référence[16, 17], l'élargissement des états excitoniques dû aux phonons acoustiques est linéaire en température T pour des valeurs de $T > 10$ K :

$$\gamma_{LA} = aT \quad (2.3)$$

avec a de l'ordre de quelques $\mu\text{eV}/\text{K}$ pour les puits quantiques $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ [16, 17]

Systèmes 0D

Dans les boîtes quantiques, la situation est complètement différente : les niveaux d'énergie électroniques sont quantifiés et distants de quelques dizaines de meV (voir chapitre 1) et les éléments de matrice de l'interaction $M_{\vec{k}\vec{q}}$ sont très petits dès que $\hbar\omega_{ph} >$ quelques meV. La relaxation d'un niveau électronique vers un autre niveau par les phonons acoustiques correspond soit à un mécanisme possible mais peu efficace soit à un mécanisme impossible ($\Delta E_{\text{électronique}} >$ largeur de la dispersion acoustique). Cet effet est connu sous le nom de goulot d'étranglement (ou 'phonon bottleneck').

Cependant, certaines observations expérimentales mettent en évidence l'existence d'un couplage non-perturbatif entre la paire électron-trou et les phonons acoustiques dans les boîtes CdTe/ZnTe[23] ainsi que dans les boîtes InAs/GaAs[22, 24] : on voit apparaître des ailes de part et d'autre d'une raie centrale lorsque la température augmente, conséquence de l'existence d'états mixtes exciton-phonon[14]. On a pu montrer ensuite que l'apparition de ces ailes de phonons entraîne une perte de cohérence optique pour la transition interbande.

Phonons optiques

Systèmes 3D, 2D et 1D

Le continuum des phonons optiques est très étroit ($\approx 3 - 4$ meV) mais comme pour les phonons acoustiques, les états factorisés électron $\otimes$ phonons forment un continuum large et conduisent à élargir le spectre.

Dans le cas particulier des systèmes 2D étudiés en référence[16], l'élargissement des états excitoniques est donné par :

$$\gamma_{LO} = b e^{-\frac{\hbar\omega_{LO}}{kT}} \quad (2.4)$$

avec b de l'ordre de la dizaine de meV pour les puits $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ [16]

Systèmes 0D

Dans les boîtes quantiques de InAs/GaAs , il a été démontré expérimentalement[6] et théoriquement[14] que les électrons et les phonons optiques sont dans un régime de couplage fort et forment un complexe mixte électron-phonon : les polarons.

De la même façon, O. Verzele *et al.*[25] ont montré que la paire électron-trou est en couplage fort avec les phonons : on parle alors de polarons excitoniques. Ce couplage fort est à l'origine d'un déphasage qui peut être important pour les états excités. En effet, on ne peut plus prendre en compte l'exciton seul mais maintenant il s'agit de raisonner en terme de polaron excitonique dont la partie phonon va être à l'origine de l'instabilité de cette entité : le temps de vie du phonon LO (de l'ordre de quelques ps dans le GaAs) est beaucoup plus court que le temps de vie radiatif de l'électron de la boîte (d'environ 1 ns). C'est donc le couplage du polaron excitonique avec le thermostat de phonons qui va être à l'origine de la relaxation.

2.1.3 Le problème de la largeur résiduelle de la raie 'à zéro phonon'

Les couplages intrinsèques dûs aux phonons s'affaiblissent lorsque l'on baisse la température. Les pertes de cohérence liées aux ailes de phonons (acoustiques) et la relaxation des polarons (optiques) deviennent négligeables pour $T \rightarrow 0$.

Pourtant, le spectre de PL basse température d'une boîte unique présente souvent une largeur très supérieure à sa valeur intrinsèque radiative ($\hbar\Gamma^{rad} \approx 1 \mu\text{eV}$). Kammerer *et al.*[15] et Favero *et al.* ont montré que cette grandeur dépend en partie des conditions d'excitation (énergie, puissance), mais que les valeurs minimales obtenues après optimisation des paramètres expérimentaux ($\approx$ quelques dizaine de μeV) étaient encore trop importantes par rapport à Γ^{rad} .

Notre motivation initiale pour l'étude de l'environnement de la boîte était de comprendre cette largeur résiduelle de la raie de PL à $T \rightarrow 0$. Cette étude fait l'objet de la suite de ce chapitre et d'une partie du chapitre 3.

2.2 Défauts statiques présents autour des boîtes

Même s'il est possible d'optimiser la croissance des boîtes quantiques, la méthode de Stranski Krastanov n'empêche pas la création de défauts dans la structure cristalline qui pourront agir en tant que centres attracteurs pour les porteurs de charges qui vont perturber la recombinaison radiative de la paire électron-trou de la boîte. L'image usuelle utilisée est que ces impuretés vont créer sur la boîte des microchamps électriques fluctuant aléatoirement et vont être responsables de l'élargissement des spectres de photoluminescence[26–28].

L'image AFM 2.1 page suivante[29] nous montre que la croissance de la boîte quantique sous l'effet de contraintes est accompagnée d'une croissance chaotique au

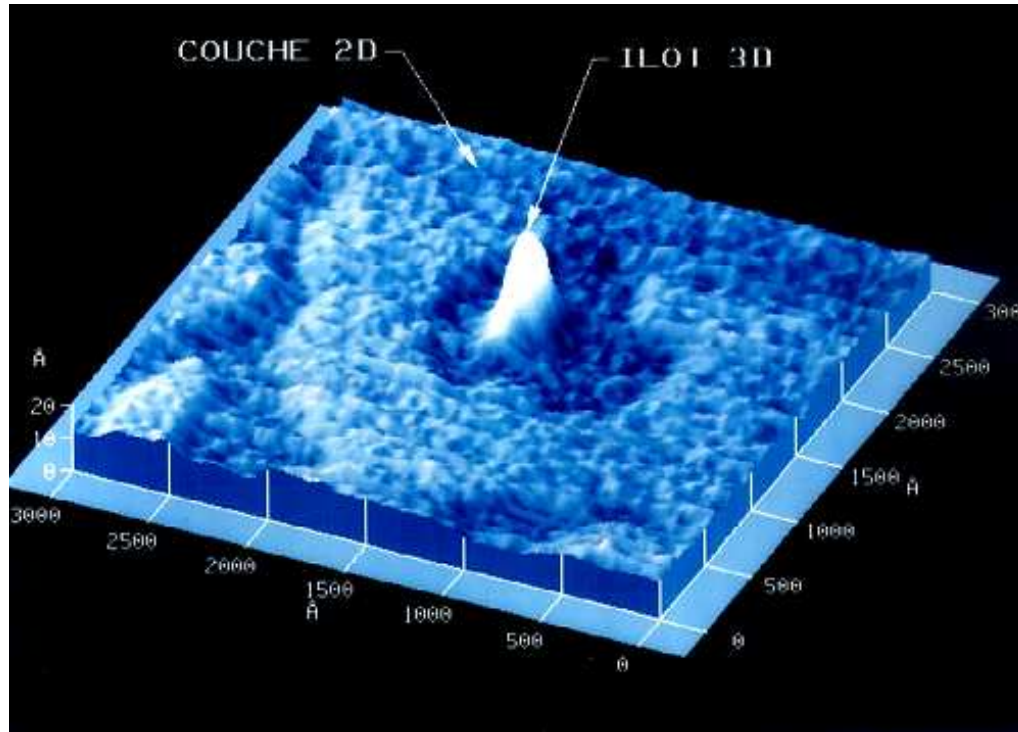


FIG. 2.1 – Image AFM d'un îlot quantique et de la couche de mouillage à son voisinage[29]

niveau de la couche de mouillage l'entourant : il y a déplétion locale de la couche de mouillage puisque la formation des boîtes se fait à partir des atomes de la couche avant formation d'îlots.

On peut rencontrer dans ce genre de structures différents types de défauts, parmi lesquels :

- La présence d'impuretés (donneurs ou accepteurs)
- Les défauts d' 'interface' de la couche de mouillage

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser d'une part à la capture d'un électron par la présence d'un donneur au voisinage de la couche de mouillage (section 2.3) et d'autre part à la capture d'un exciton dans un défaut d'interface de la couche de mouillage (sorte de mini-boîte ; section 2.4).

2.3 Piège créé par une impureté

Dans cette section, nous discuterons tout d'abord les états de piège associés à la couche de mouillage (paragraphe 2.3.1 et 2.3.2) puis ensuite un modèle asymptotique pour un piège dans la couche de mouillage ou dans la barrière (paragraphe 2.3.3).

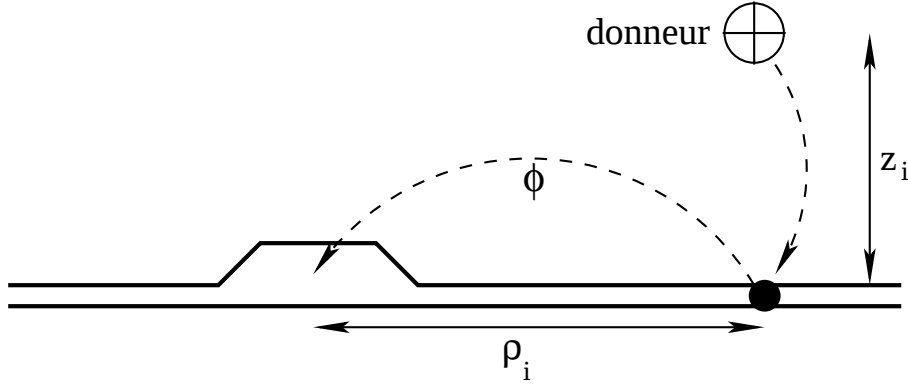


FIG. 2.2 – Illustration de l'influence d'un électron sur la paire électron-trou de la boîte : le donneur piège l'électron qui induit un potentiel Φ sur la paire électron-trou de la boîte (on néglige l'influence du donneur sur la paire de la boîte)

2.3.1 Etat localisé d'un électron dans la couche de mouillage

La présence d'un donneur ionisé va créer un centre attracteur pour un électron (photoexcité par exemple) se déplaçant dans la couche de mouillage (lieu privilégié car le potentiel ressenti par l'électron est attractif par rapport à celui de la matrice de GaAs).

L'hamiltonien régissant la fonction d'onde de l'électron est alors :

$$\mathcal{H}_{el} = \mathcal{H}_e + \mathcal{V}_{coul}^{donneur} \quad (2.5)$$

où $\mathcal{H}_e$ est l'hamiltonien en z pour l'électron dans un puits quantique de hauteur finie U_e d'épaisseur d , l'origine de l'axe z étant choisie au centre du puit (la couche de mouillage est traitée comme un puits quantique) et $\mathcal{V}_{coul}^{donneur}$ est le potentiel coulombien créé par la présence du donneur :

$$\mathcal{H}_e = -\frac{\hbar^2}{2m_{ze}^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U_e \Theta(z_e^2 - d^2/4) \quad (2.6)$$

$$\mathcal{V}_{coul}^{donneur} = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{e^2}{\sqrt{(\vec{\rho} - \vec{\rho}_i)^2 + (z - z_i)^2}} \quad (2.7)$$

ρ_i et z_i représentent les coordonnées de l'impureté (respectivement dans le plan et suivant l'axe de croissance, voir la figure 2.2), l'origine du repère étant choisie au niveau de la boîte (centre de la boîte dans le plan, milieu de la couche de mouillage suivant l'axe de croissance)

On suppose que la fonction d'onde est séparable suivant l'axe de croissance z et le mouvement dans le plan $\vec{\rho}$:

- la fonction d'onde suivant z ($\chi(z)$) est déterminée en traitant la couche de mouillage comme un puits quantique d'épaisseur $d = 3.33 \text{ \AA}$:

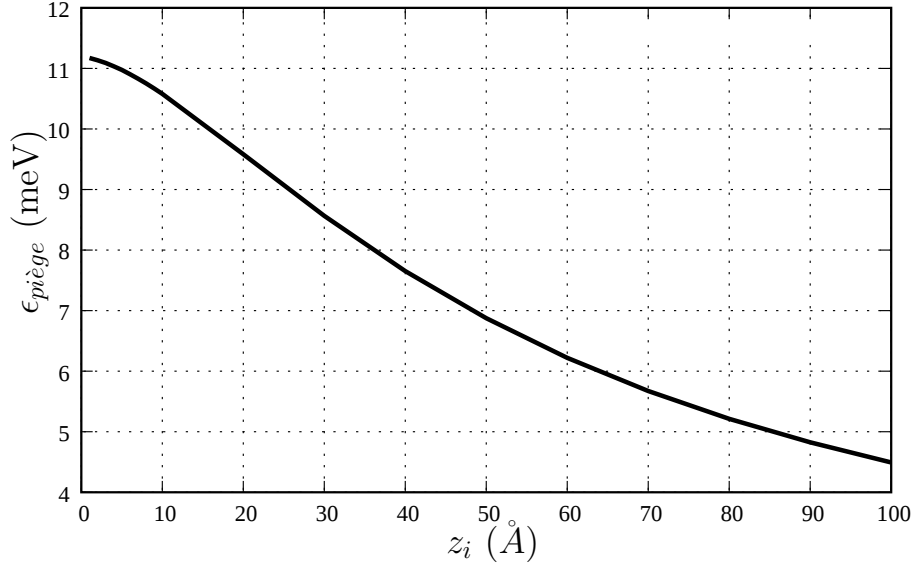


FIG. 2.3 – Energie de liaison du piège créé par la présence d'un donneur en fonction de la distance z_i par rapport au centre du puit (couche de mouillage, $d=3.33$ Å)

$$\chi_e(z_e) = \begin{cases} A_e \exp(-K_e z_e) & \text{si } z_e > 0 \\ C_e \cos(k_e z_e) & \text{si } -\frac{d}{2} < z_e < \frac{d}{2} \\ A_e \exp(K_e z_e) & \text{si } z_e < 0 \end{cases} \quad (2.8)$$

– suivant $\vec{\rho}$, on cherche une solution liée de la forme (avec une origine prise au niveau de l'impureté) :

$$\Psi_{1S}^l(\vec{\rho}) = \sqrt{\frac{2}{\pi \lambda_{1S}^2}} \exp\left(-\frac{\rho}{\lambda_{1S}}\right) \quad (2.9)$$

On détermine λ_{1S} (le paramètre variationnel) ainsi que l'énergie de liaison du donneur en minimisant

$$\epsilon_{\text{piege}} = \langle \Psi_{1S}^l | \mathcal{H}_{el} | \Psi_{1S}^l \rangle \quad (2.10)$$

On en déduit alors l'énergie de liaison en fonction de la distance z_i (voir figure 2.3) définie comme la différence des énergies minimale de l'électron avec et sans l'impureté.

2.3.2 Influence d'un l'électron piégé dans la couche de mouillage sur l'état fondamental $|S\rangle$ de la boîte ronde

L'électron piégé dans la couche de mouillage va induire un décalage en énergie sur la paire électron-trou de la boîte.

L'électron piégé crée un potentiel

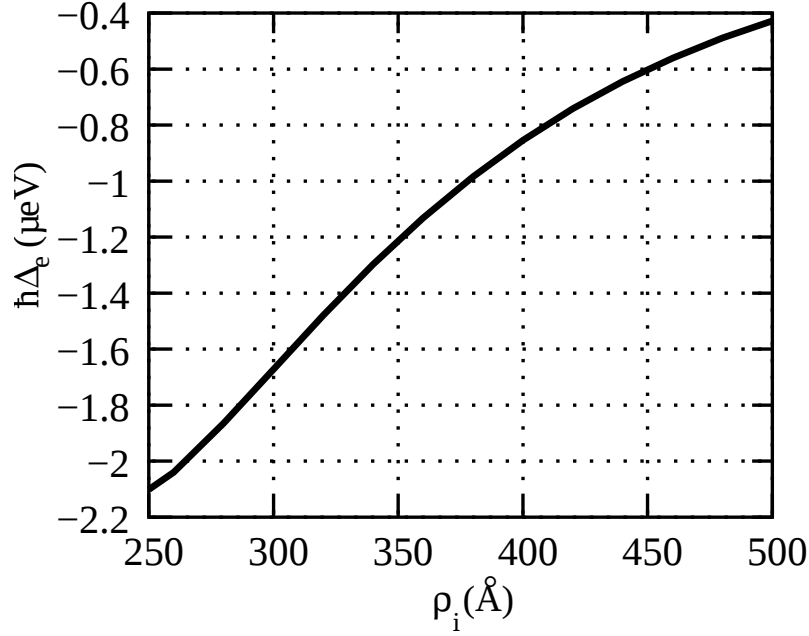


FIG. 2.4 – Décalage en énergie induit par la présence d'un électron sur la transition S en fonction de la distance au centre de la boîte ρ_i pour $z_i = 50$ Å

$$\Phi(\vec{\rho}, z) = -\frac{e}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \frac{|\Psi_{1S}^l(\vec{\rho}_l, z_l)|^2}{\sqrt{(\vec{\rho} - \vec{\rho}_l - \vec{\rho}_i)^2 + (z - z_l)^2}} dz_l d\vec{\rho}_l \quad (2.11)$$

On en déduit la variation $\hbar\Delta_e$ de l'énergie de la transition interbande fondamentale de la boîte ronde $|\Psi_{ex}\rangle$ en fonction des paramètres du donneur (figure 2.4) : l'évolution du décalage est en $1/\rho_i^3$ pour $\rho_i \gg R$.

La correction $\hbar\Delta_e$ est évaluée à l'ordre le plus bas :

$$\hbar\Delta_e = -e\langle\Psi_{exc}|\Phi(\rho_e, z_e) - \Phi(\rho_h, z_h)|\Psi_{exc}\rangle \quad (2.12)$$

La courbe de la figure 2.4 est tracée en supposant que la fonction d'onde de l'électron piégé est très peu étalée dans le plan (la valeur prise pour $z_i = 50$ Å l'impose) et on ne considère que des valeurs de $\rho_i > 300$ Å pour ne pas avoir à prendre en compte l'interaction d'échange électron de la boîte-électron du puit dans les calculs.

2.3.3 Comportement asymptotique de $\hbar\Delta_e$

Lorsque la distance piège-boîte est grande devant les étalements des fonctions d'onde des porteurs (de la boîte et piégé), on peut obtenir une expression approchée pour $\hbar\Delta_e$. Le développement de :

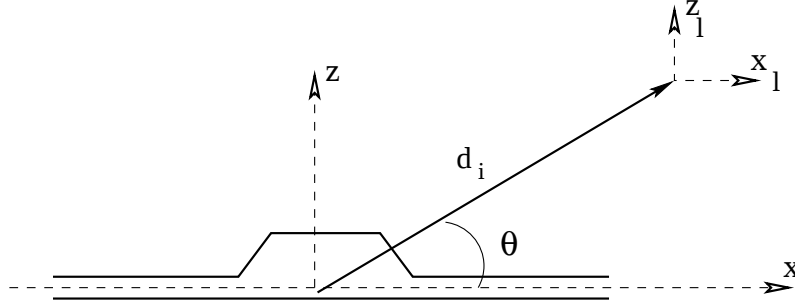


FIG. 2.5 – Définition du repère de base de travail du développement asymptotique

$$\begin{aligned}
 [(\vec{\rho} - \vec{\rho}_i - \vec{\rho}_l)^2 + (z - z_l)^2]^{-1/2} \approx & \frac{1}{\rho_i} \left[1 - \frac{1}{2} \frac{(\vec{\rho} - \vec{\rho}_l)^2 + (z - z_l)^2 - 2\vec{\rho}_i(\vec{\rho} - \vec{\rho}_l)}{\rho_i^2} \right. \\
 & \left. + \frac{3}{8} \frac{[2\vec{\rho}_i(\vec{\rho} - \vec{\rho}_l)]^2}{\rho_i^4} + \dots \right]
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

nous permet d'obtenir l'expression du comportement asymptotique de $\hbar\Delta_e$:

$$\begin{aligned}
 \hbar\Delta_e = & -e \langle \Psi_e \Psi_h | \Phi(\vec{\rho}_e, z_e) - \Phi(\vec{\rho}_h, z_h) | \Psi_e \Psi_h \rangle \\
 \approx & \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int d\vec{r}_e d\vec{r}_h |\Psi_e|^2 |\Psi_h|^2 \left[\frac{\vec{\rho}_i(\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h)}{\rho_i^3} \right. \\
 & - \frac{1}{2} \frac{\rho_e^2 - \rho_h^2 - 2\vec{\rho}_l(\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h) + z_e^2 - z_h^2 - 2(z_e - z_h)z_l}{\rho_i^3} \\
 & \left. + \frac{3}{2} \frac{(\vec{\rho}_i\vec{\rho}_e)^2 - (\vec{\rho}_i\vec{\rho}_h)^2 - 2\vec{\rho}_i(\vec{\rho}_e - \vec{\rho}_h)\vec{\rho}_i\vec{\rho}_l}{\rho_i^5} \right]
 \end{aligned} \tag{2.14}$$

On suppose que le piège est isotrope :

$$\langle x_l \rangle = \langle y_l \rangle = \langle z_l \rangle = 0$$

et que la boîte est symétrique dans le plan :

$$\langle x_e \rangle = \langle x_h \rangle = \langle y_e \rangle = \langle y_h \rangle = 0$$

Pour une boîte 'cylindrique', on a en plus :

$$\langle x_{e,h}^2 \rangle = \langle y_{e,h}^2 \rangle$$

Dans ce cas, si on note $\vec{d}_i = d_i(\cos(\theta), 0, \sin(\theta))$ (voir la figure 2.5), on obtient :

$$\hbar\Delta_e \approx \hbar\Delta_{e1} + \hbar\Delta_{e2} \tag{2.15}$$

où

$$\hbar\Delta_{e1} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\sin(\theta)}{d_i^2} \left[(\langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle) \right] \quad (2.16)$$

et

$$\hbar\Delta_{e2} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{2d_i^3} \left[(3\cos^2(\theta)-2)(\langle x_e^2 \rangle - \langle x_h^2 \rangle) + (3\sin^2(\theta)-1)(\langle z_e^2 \rangle - \langle z_h^2 \rangle) \right] \quad (2.17)$$

Il y a donc deux contributions dans le décalage en énergie $\hbar\Delta_e$:

- un décalage monopôle-dipôle $\hbar\Delta_{e1}$ présent lorsque la paire électron-trou de la boîte forme un dipôle suivant l'axe z : $\langle z_e \rangle \neq \langle z_h \rangle$
- un décalage monopôle-quadrupôle $\hbar\Delta_{e2}$

Les décalages pour $\theta = 0$ et $\theta = \pi/2$ sont montrés en figures 2.6 page suivante et 2.7 page ci-contre (pour la même boîte qu'en figure 2.4 page 42).

Pour $\theta = 0$, on retrouve le cas d'un défaut de la couche de mouillage (piège créé par une impureté). On calcule que dans le cas d'un piège latéral, l'expression asymptotique est très bonne au delà de $d_i \approx 300$ Å (figures 2.4 page 42 et 2.6 page suivante).

Le cas $\theta = \pm\pi/2$ correspond à un défaut de la barrière, au dessus ou en dessous de la boîte quantique. A l'ordre le plus bas, on a un couplage monopôle-dipôle. Cela résulte de l'absence de parité pour le potentiel de la boîte, qui induit un moment de dipôle $p_z = -e(\langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle) = -ed_z$ non nul ($e>0$). Ce paramètre est à l'origine d'un effet Stark linéaire pour la transition interbande (voir les références [2, 31] et section 2.6). Pour les paramètres de la figure 2.7 page ci-contre, $d_z = -0.04$ Å est très faible (boîte 'basse' : $h=15$ Å). Vasanelli *et al.* ont montré[2] que d_z dépend des détails du potentiel confinant. Ses calculs montrent que d_z peut être bien plus important. Les courbes en tirets et tiret-point figure 2.7 page suivante sont obtenues pour $d_z = 1$ Å $\ll h$ (en supposant que les étalements des fonctions d'onde restent les mêmes).

Remarques

On présente dans la suite quelques remarques concernant ces résultats :

- (i). On observe que la paire de la boîte est aussi sensible à une perturbation verticale que latérale. Ceci est en partie surprenant, puisque la boîte est très 'plate' ($h \ll R$). Toutefois, il faut noter que la contribution latérale grandit avec $\approx R^2$ (à cause des éléments de matrice $\langle x^2 \rangle$) et que nous avons négligé des couplages entre états différents de la boîte (qui joueront un rôle dans les grandes boîtes).
- (ii). Il faut également noter que l'équation asymptotique pour $\hbar\Delta_e$ ne dépend pas de la distribution de charge dans le piège, comme attendu pour une distribution de charge non nulle.
- (iii). Si on considère une distribution de pièges autour de la boîte, le terme monopôle-dipôle s'annule ($\hbar\Delta_e$ change de signe, à cause de $\sin(\theta)$, pour un piège en dessous et au dessus de la boîte), tandis que la moyenne angulaire du

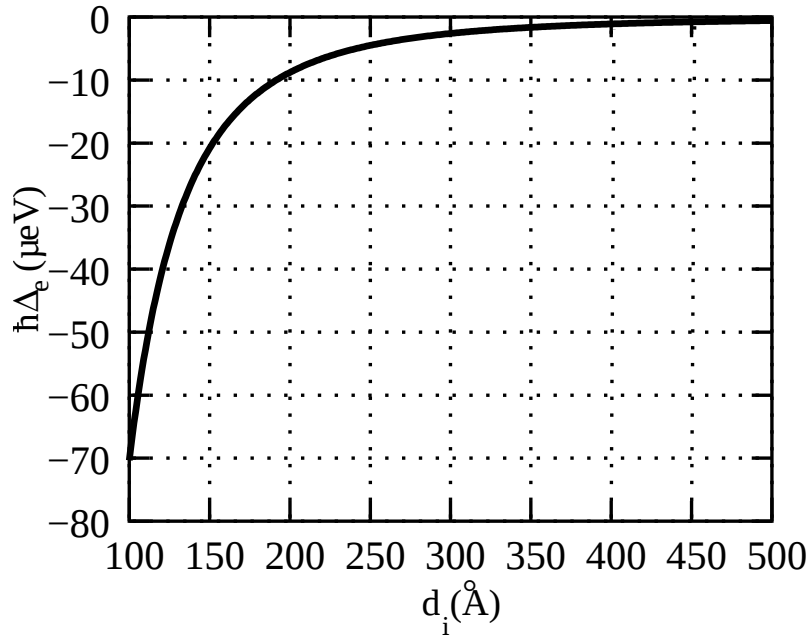


FIG. 2.6 – Décalage en énergie induit par la présence d'un électron dans le plan ($\theta = 0$) à la distance d_i de la boîte

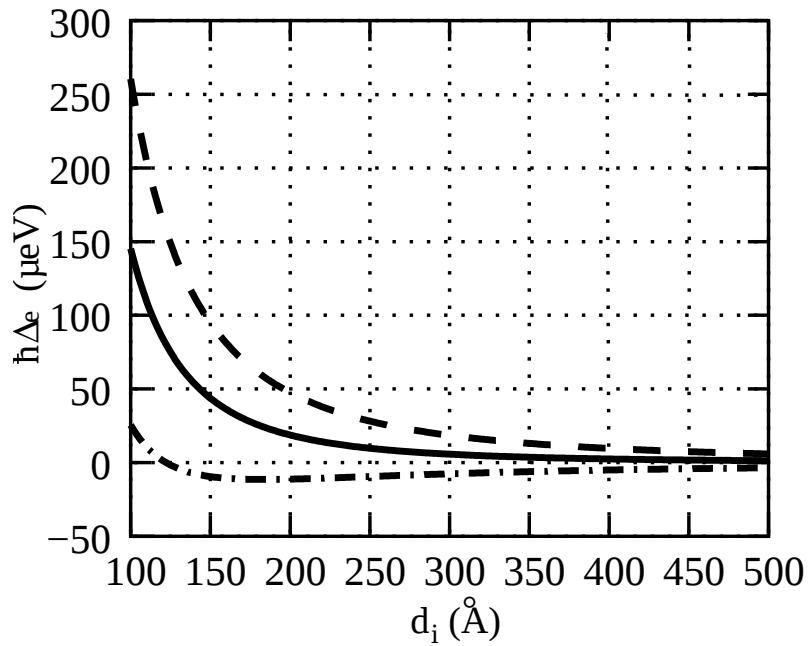


FIG. 2.7 – Décalage en énergie induit par un électron au dessus ou en dessous de la boîte à la distance d_i . $d_z = -0.04$ $\text{\AA}$ en trait plein, $d_z = -1$ $\text{\AA}$ au dessus de la boîte en tiret ($\theta = \pi/2$) et en dessous de la boîte en tiret-point ($\theta = -\pi/2$)

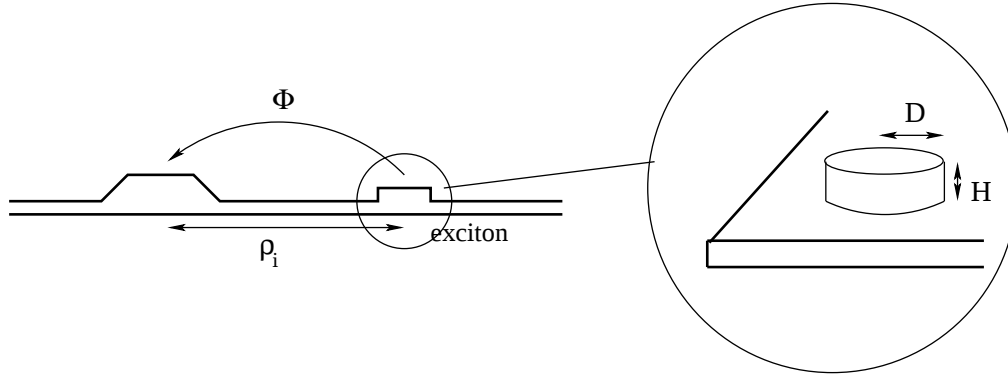


FIG. 2.8 – Schéma du défaut d'interface. On modélise le défaut en supposant qu'il a une symétrie cylindrique (rayon D , hauteur H).

terme latéral donne une contribution proportionnelle à $(\langle z_e^2 \rangle - \langle z_h^2 \rangle - (\langle x_e^2 \rangle - \langle x_h^2 \rangle))/d_i^3$.

Ainsi, une distribution uniforme de pièges engendre une contribution (faiblement) divergente à $\hbar\Delta_e$. Ces deux résultats démontrent clairement le rôle critique de l'environnement électrostatique sur l'énergie des états confinés des boîtes.

- (iv). On notera que les porteurs confinés dans les 'autres' boîtes (voisines) peuvent également servir de perturbateurs à la paire confinée. Toutefois, cet effet latéral sera faible pour des distances inter-boîtes typiques de 500 Å (densité surfacique de boîte $\gtrsim 10^{10} m^{-2}$).
- (v). Finalement, on soulignera que les complexes à plus d'une paire électron-trou doivent présenter des corrections $\hbar\Delta$ plus grandes en présence d'un environnement électrostatique fluctuant. En particulier, le décalage de l'état fondamental d'un 'biexciton' doit être deux fois plus grand que celui d'un exciton, tandis que celui pour un trion (ou 'exciton' chargé) sera du type monopôle-monopôle à l'ordre le plus bas.

2.4 Piège créé par un défaut d'interface

2.4.1 L'exciton lié à un défaut d'interface

L'exciton dans le massif

Un exciton est une paire électron-trou corrélée par l'interaction coulombienne. C'est un système à deux particules, de masse m_e et m_h , dont la partie enveloppe est décrite par une équation de Schrodinger similaire à celle de l'atome d'hydrogène. Le mouvement relatif de l'électron et du trou est alors décrit par une fonction d'onde de type hydrogénoïde $\phi^{3d}(r)$, et le centre de masse des deux particules se déplace dans le cristal comme un état délocalisé, de vecteur d'onde total $\vec{k}_{ex}$.

$$\Psi_{ex}^{3D}(\vec{r}, \vec{R}) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\vec{k}_{ex} \cdot \vec{R}} \phi^{3d}(r) \quad (2.18)$$

où

$$\phi^{3d}(r) = \frac{1}{\sqrt{\pi(a_B)^3}} e^{-\frac{r}{a_B}} \quad (2.19)$$

a_B représente le rayon de Bohr effectif de l'exciton (distance moyenne électron-trou).

L'exciton bidimensionnel

Le confinement de l'électron et du trou dans le plan d'un puits quantique renforce leur interaction coulombienne et affecte leur mouvement relatif. Par rapport au matériaux 3D, on a une augmentation de leur énergie de liaison.

La description de l'exciton dans le plan passe par la séparation du mouvement du centre de masse et du mouvement relatif des deux particules. Le mouvement relatif est décrit par une fonction d'onde purement 2D caractérisée par un paramètre variationnel a_{2d} fixé par l'interaction coulombienne et le confinement suivant z .

On choisit pour l'état fondamental une fonction d'essai du type[3] :

$$\Psi_{ex}^{2D}(\vec{R}_{\parallel}, \vec{\rho}, z_e, z_h) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{R}_{\parallel}} \cdot \phi^{2d}(\rho) \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \quad (2.20)$$

où

$$\phi^{2d}(\rho) = \sqrt{\frac{2}{\pi a_{2d}^2}} e^{-\frac{\rho}{a_{2d}}} \quad (2.21)$$

le paramètre de variation a_{2d} décrit la distance moyenne électron-trou dans le plan de la couche et $\chi_e(z)$ et $\chi_h(z)$ représentent le confinement des particules par le potentiel du puit quantique (la couche de mouillage dans notre cas).

L'exciton lié à un défaut d'interface

On introduit un confinement latéral dans le puit quantique. On suppose que le confinement n'affecte que le mouvement du centre de masse, le mouvement relatif électron-trou restant imposé par le potentiel coulombien effectif qui est la moyenne du potentiel coulombien 3D sur les densités de probabilité $\chi_e^2(z_e)$ et $\chi_h^2(z_h)$. Pour une distribution d'essai gaussienne du mouvement lié du centre de masse, la fonction d'onde de l'exciton s'écrit :

$$\Psi_{ex}^{def}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \frac{\eta}{\sqrt{\pi}} e^{-R_{\parallel}^2 \eta^2 / 2} \cdot \phi^{2d}(\rho) \cdot \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \quad (2.22)$$

On suppose que le potentiel ressenti par la paire à une forme gaussienne et que sa profondeur est U_e pour l'électron et U_h pour le trou.

$$\mathcal{V}_{e,h}^{def} = -U_{e,h} \cdot 1_{[d/2, d/2+H]}(z_{e,h}) \cdot e^{-\rho_{e,h}^2 / D^2} \quad (2.23)$$

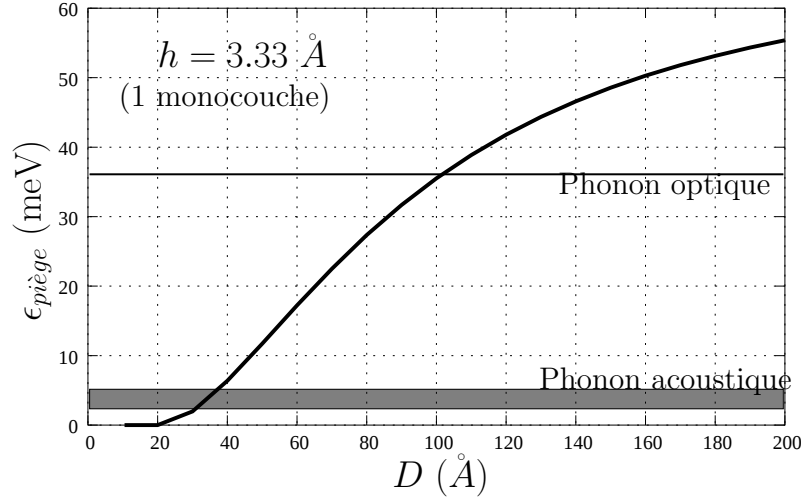


FIG. 2.9 – Energie de liaison de l'exciton avec les 'bandes énergétiques d'efficacité' des phonons acoustiques et optiques

où $1_{[a,b]}$ est la fonction indicatrice égale à 1 dans l'intervalle $[a, b]$ et 0 en dehors.

η représente le paramètre variationnel, D et H sont le rayon et la hauteur du défaut (voir la figure 2.8 page ci-contre)

Ainsi, pour un exciton lié à un défaut d'interface, l'hamiltonien se compose d'une partie puit quantique $\mathcal{H}_{QW}$ d'épaisseur d centré en $z = 0$ et d'une partie défaut d'interface $\mathcal{V}^{def}$ [30]

$$\mathcal{H}_{ex} = \mathcal{H}_{QW} + \mathcal{V}_{def}(e) + \mathcal{V}_{def}(h) \quad (2.24)$$

où $\mathcal{V}_{e,h}^{def}$ sont donnés par l'expression (2.17) et où

$$\mathcal{H}_{QW} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_h + \mathcal{T}_{xy} + \mathcal{H}_{coul} \quad (2.25)$$

$\mathcal{H}_{e,h}$ représente l'hamiltonien suivant z pour l'électron et le trou

$\mathcal{T}_{xy}$ représente la partie cinétique pour le mouvement dans le plan :

$$\mathcal{T}_{xy} = -\frac{\hbar^2}{2M_{xy}} \left[\frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2} \right] - \frac{\hbar^2}{2\mu_{xy}} \left[\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \rho \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \right] \quad (2.26)$$

Il possède une partie mouvement des coordonnées du centre de masse et une autre concernant les coordonnées relatives. M_{xy} et μ_{xy} représentent la masse totale et la masse réduite pour le mouvement dans le plan xy .

$\mathcal{H}_{coul}$ représente l'interaction coulombienne des deux particules.

L'énergie de liaison (figure 2.9) est alors définie comme la différence des énergies de l'état fondamental de l'exciton avec et sans défaut d'interface.

2.4.2 Influence de l'exciton piégé sur la transition fondamentale de la boîte ronde

Lorsque le défaut se trouve loin de la boîte, l'évolution du décalage en énergie $\hbar\Delta_X$ est en $1/\rho_i^5$ pour $\rho_i \gg R$, comme montré en figure 2.10 page ci-contre.

Ce comportement résulte d'un développement similaire à celui du paragraphe 2.3.3 :

$$\hbar\Delta_X \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{129}{4\rho_i^5} \left[\left(\frac{m_h - m_e}{m_h + m_e} \right) (\langle x_e^2 \rangle - \langle x_h^2 \rangle) \langle x_l^2 \rangle \right] \quad (2.27)$$

où

$$\langle x_l^2 \rangle = \frac{3}{4} a_{2d}^2 \quad (2.28)$$

est associé à l'étalement de la fonction d'onde du mouvement réduit de la paire piégée (nous avons supposé que $\langle z_{e,l} \rangle = \langle z_{h,l} \rangle = 0$).

On observe que ce résultat ne dépend pas des détails du mouvement confiné pour le centre de masse de l'exciton.

Il est intéressant de comparer les décalages $\hbar\Delta_e$ ($\theta = 0$) et $\hbar\Delta_X$ (figure 2.11 page suivante). Le couplage entre deux distributions neutres décroît beaucoup plus rapidement que celui entre la paire de la boîte et un électron seul. Toutefois, une comparaison des figures 2.4 page 42 et 2.10 montre que $|\hbar\Delta_X| > |\hbar\Delta_e|$ pour des distances boîte-piège $\lesssim 450$ Å.

2.5 Temps mis en jeu

Le deuxième paramètre clef dans l'étude du rôle de l'environnement dans l'élargissement de la PL de la boîte est le temps caractéristique des fluctuations. Son calcul (par exemple pour les deux cas considérés en 2.3 et 2.4) n'est toutefois pas trivial. De plus, différents processus peuvent être envisagés. Ainsi, le piégeage d'un électron sur le niveau fondamental d'un défaut peut être assisté par les phonons acoustiques, par d'autres porteurs libres... Aussi, le piégeage peut se faire en un seul processus ou résulter d'une cascade à travers les états excités du piège.

Une difficulté supplémentaire vient du fait que les processus thermiquement activés de 'dépiégeage' sont fortement inhibés à $T \rightarrow 0$. Ainsi, le 'vidage' des pièges occupés par un électron est essentiellement non-radiatif (et donc difficilement modélisable). Un piège occupé par un exciton peut se vider aussi bien non-radiativement que radiativement. Le temps de vie radiatif d'un exciton piégé dans un puit quantique a été évalué en références[32, 33]. On trouve une forte variation pour τ_{rad} , borné inférieurement par le temps de vie intrinsèque d'exciton 'libre' ($\approx$ quelques dizaines de ps) et allant jusqu'à plusieurs centaines de ps.

Ainsi, dans nos simulations des spectres optiques du chapitre 3, les temps de fluctuations seront des paramètres du modèle. Néanmoins, il faut souligner l'aspect suivant (qui sera discuté dans le chapitre 3) : un potentiel perturbateur engendrant des décalages de l'ordre de $\hbar\Delta$ sur l'énergie de la transition de la boîte, peut effectivement mener à un élargissement du spectre s'il fluctue de façon aléatoire sur une

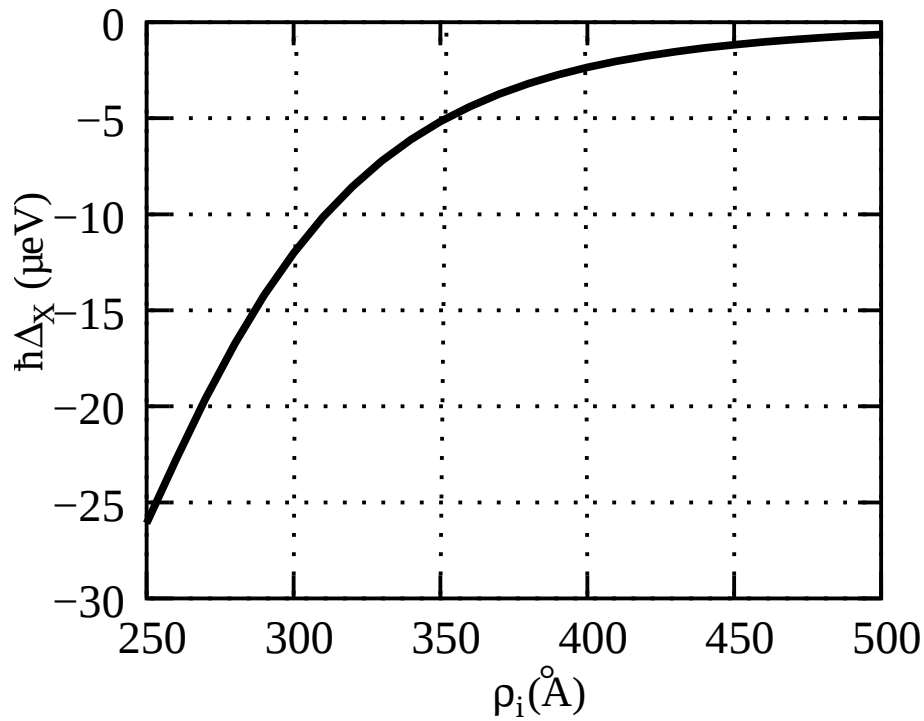


FIG. 2.10 – Décalage en énergie induit par la présence d'un exciton dans le défaut sur la transition $|S\rangle$ de la boîte, $D=100$ $\text{\AA}$, $H=3.33$ $\text{\AA}$

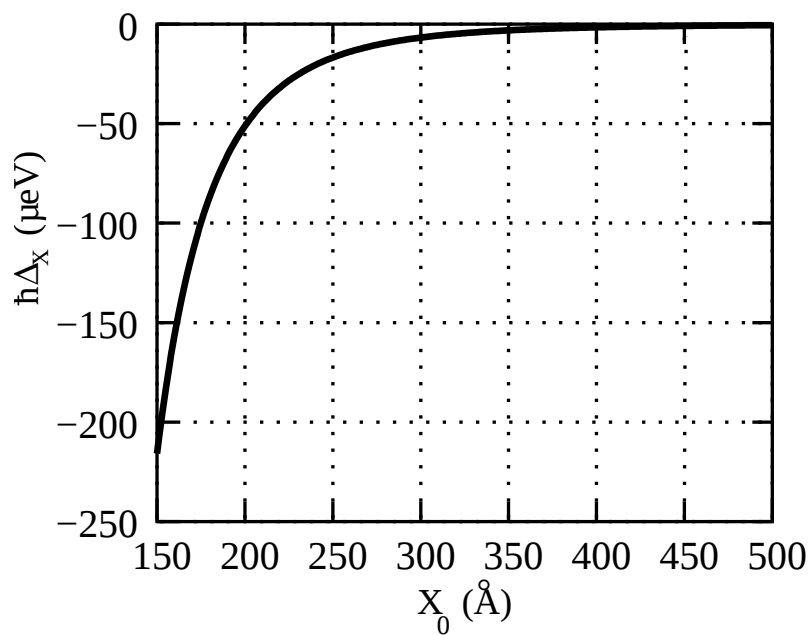


FIG. 2.11 – Décalage calculé sur la base de l'équation (2.27)

échelle de temps τ_0 tel que $\Delta\tau_0 < 1$ (régime de '*rétrécissement par le mouvement*'). Ainsi, pour des largeurs de la PL de l'ordre de quelques dizaines de μeV , le temps mis en jeu est $\tau_0 < \text{quelques dizaines de ps}$, correspondant à une borne temporelle qui n'est par déraisonnablement courte.

On note enfin très brièvement un autre mécanisme possible de couplage environnement-boîte : un électron d'énergie $E=1 \text{ meV}$ se propageant dans la couche de mouillage met un temps $\tau_1 \approx 0.3 \text{ ps}$ pour 'traverser' une boîte de $100 \text{ \AA}$ de rayon. Ce résultat (purent classique) suggère que les perturbations dus au 'passage' d'électrons, trous ou exciton photoinjectés peuvent jouer un rôle important dans la PL de la boîte (sa dépendance éventuelle avec le taux de photoinjection sera discuté dans le chapitre 3[34]).

2.6 Champ électrique latéral

Nous avons calculé dans les section 2.3 et 2.4 le décalage en énergie $\hbar\Delta$ du niveau fondamental de la boîte dans deux cas réalistes. Dans d'autres travaux, le rôle de l'environnement électrostatique est modélisé par des 'microchamps' fluctuant[26–28], sans qu'il y ait souvent souci de les relier à une situation physique précise.

Dans cette section, nous allons évaluer le champ créé au niveau de la boîte par les différents types de porteurs se trouvant à son voisinage.

Cela nous permettra par la suite, lorsque l'on mentionnera l'influence de ces perturbateurs sur les états de la boîte, d'employer le terme usuel microchamp fluctuant pour désigner le rôle joué par ces perturbateurs.

2.6.1 Champ électrique créé par une particule ponctuelle

Par définition, le champ électrique créé par une particule ponctuelle de charge q située à une distance d d'un point est donné par l'expression :

$$E = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{q}{d^2} \quad (2.29)$$

soit

$$E(\text{kV/cm}) \approx \frac{11.5}{\left(\frac{d(\text{\AA})}{100}\right)^2} \quad ; \quad \epsilon_r = 12.4 \quad (2.30)$$

2.6.2 Influence du champ sur les états propres de la boîte

L'hamiltonien en présence d'un champ s'écrit (voir paragraphe 1.2.9)

$$\mathcal{H}_{\text{champ}} = \mathcal{H}_0 - q\vec{F}\vec{\rho} \quad (2.31)$$

où $\mathcal{H}_0$ représente l'hamiltonien en l'absence du champ électrique, $q=+e$ pour les trous et $q=-e$ pour les électrons ($e>0$ désigne la charge de l'électron).

Eléments de matrice et états propres

On se place dans la base d'état à une particule $|\Psi_S\rangle, |\Psi_{P_+}\rangle, |\Psi_{P_-}\rangle$ (la prise en compte des états D couplés aux états P auront très peu d'incidence sur la valeur de l'énergie de l'état fondamental).

La matrice hermitique associée à la présence du champ (pour l'électron et le trou) devient alors :

$$H = \begin{pmatrix} E_S & \alpha_x + i\alpha_y & \alpha_x - i\alpha_y \\ \alpha_x - i\alpha_y & E_P & 0 \\ \alpha_x + i\alpha_y & 0 & E_P \end{pmatrix} \quad (2.32)$$

où E_S et E_P représentent respectivement les niveaux d'énergie pour les niveaux S et P , $\alpha_x = -2qAF \cos(\theta_F)$ et $\alpha_y = -2qAF \sin(\theta_F)$, A étant un coefficient dépendant des caractéristiques des fonction enveloppes de l'électron ou du trou $A = \frac{\beta_S^2 \beta_P^2}{(\beta_S^2 + \beta_P^2)^2}$ (avec les notations du chapitre 1)

Le champ électrique est donc une perturbation qui va 'contaminer' l'état fondamental de l'électron (trou) par les autres état propres de $\mathcal{H}_0$.

Posons : $\Delta = (E_P - E_S)^2 + 8(\alpha_x^2 + \alpha_y^2)$

Les nouveaux états d'énergie sont :

– Pour le fondamental d'énergie $E_{fond} = E_S + \frac{(E_P - E_S) - \sqrt{\Delta}}{2}$

$$|\Psi_{fond}\rangle = C_{fond}(|\Psi_S\rangle - \frac{2AF e^{-i\theta_F}}{E_P - E_S + \sqrt{\Delta}}|\Psi_{P_+}\rangle - \frac{2AF e^{i\theta_F}}{E_P - E_S + \sqrt{\Delta}}|\Psi_{P_-}\rangle) \quad (2.33)$$

– Pour le premier niveaux excité d'énergie E_P

$$|\Psi_{e1}\rangle = C_1(-e^{-i\theta_F}|\Psi_{P_+}\rangle + |\Psi_{P_-}\rangle) \quad (2.34)$$

– Pour le deuxième niveaux excité d'énergie $\frac{E_S + E_P + \sqrt{\Delta}}{2}$

$$|\Psi_{e2}\rangle = C_2(|\Psi_S\rangle - \frac{2AF e^{-i\theta_F}}{E_P - E_S - \sqrt{\Delta}}|\Psi_{P_+}\rangle - \frac{2AF e^{i\theta_F}}{E_P - E_S - \sqrt{\Delta}}|\Psi_{P_-}\rangle) \quad (2.35)$$

$$\text{où } C_{fond} = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{8(\alpha_x^2 - \alpha_y^2)}{(E_P - E_S + \sqrt{\Delta})^2}}}, C_1 = \frac{1}{\sqrt{1 + e^{-4i\theta_F}}} \text{ et } C_2 = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{8(\alpha_x^2 - \alpha_y^2)}{(E_P - E_S - \sqrt{\Delta})^2}}}$$

Evolution des niveaux d'énergie : effet Stark 'latéral'

Dans l'approximation du champ faible, on obtient une correction à l'énergie de recombinaison $E_{Stark}(F)$ quadratique en F (effet Stark quadratique, voir la figure 2.12 page ci-contre) telle que :

$$E_{Stark}(F) \approx -8e^2 \left(\frac{A_e^2}{E_P^e - E_S^e} + \frac{A_h^2}{E_P^h - E_S^h} \right) F^2 \quad (2.36)$$

D'après cette expression, le terme quadratique en F est proportionnel au carré du facteur A qui est homogène à une distance. Une analyse des figures 2.12 page

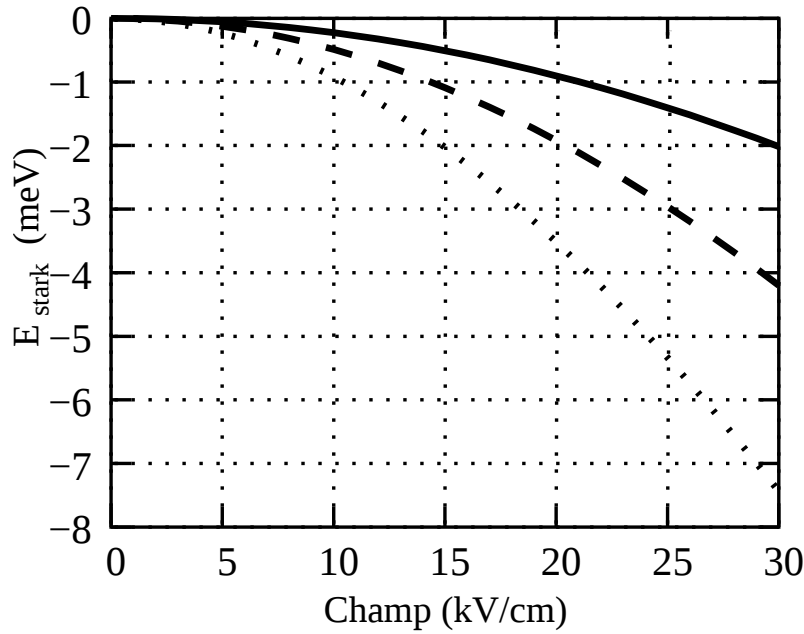


FIG. 2.12 – Effet Stark quadratique pour 3 boîtes rondes de rayon R : $R=80$ Å en trait plein, $R=100$ Å en tirets, $R=120$ Å en pointillés ; la hauteur $h=15$ Å, les confinements $\Delta E_c = 697$ meV et $\Delta E_v = 288$ meV

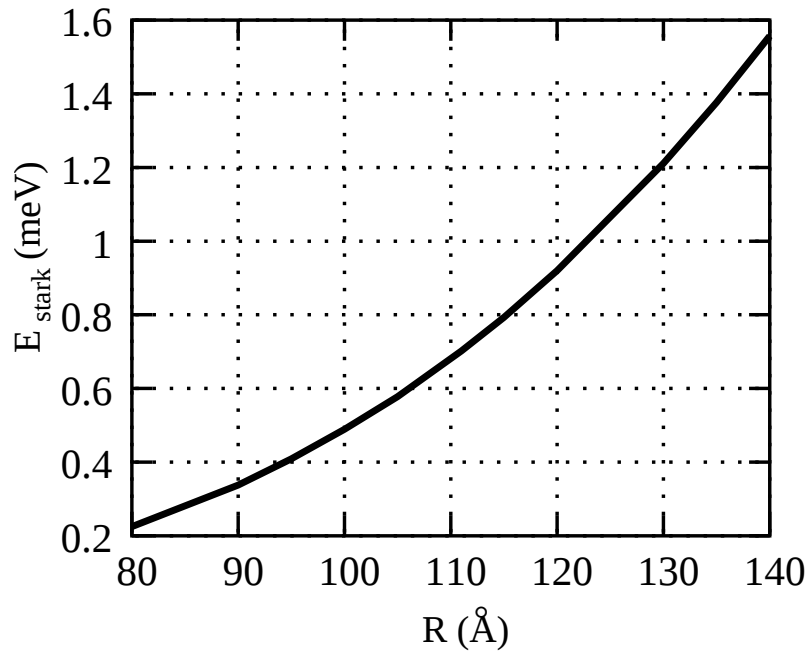


FIG. 2.13 – Evolution de l'effet stark en fonction du rayon R de la boîte pour un champ $F=10$ kV/cm

suivante et 2.13 page ci-contre permet d'obtenir $E_{stark} \propto F^2 R^\alpha$ avec $\alpha = 3.45$. Dans un puit simple de hauteur infini, on obtient une dépendance en $F^2 L^4$ où L désigne la largeur du puit. Le carré du champ est dû à la perturbation au 2^{ème} ordre, tandis que L^4 vient d'un élément de matrice $\propto L$ au numérateur et un écart $E_2 - E_1 \propto 1/L^2$ au dénominateur. Dans les boîtes quantique, α est fonction des différents paramètres de confinement : l'écart entre niveaux S et P est $\approx 1/R^2$ seulement pour des grandes boîtes, et les coefficients A ne sont pas strictement linéaires avec R (en particulier pour les petites boîtes).

2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons mentionné (couplage avec le réseau cristallin) et étudié (environnement électrostatique) différents éléments responsables de la perte de cohérence de la paire électron-trou de la boîte.

Nous avons vu que la présence d'éléments perturbateurs statiques (électrons ou excitons) induit un décalage en énergie de l'ordre de quelques μeV pour des perturbations loin de la boîte et peut atteindre une centaine de μeV pour des perturbations beaucoup plus proches. Ces perturbateurs créent alors des microchamps au niveau de la boîte de l'ordre de quelques kV/cm.

Nous allons dans le chapitre 3 nous intéresser à l'influence du point de vue dynamique de ces porteurs sur la réponse optique des boîtes

Chapitre 3

Réponse optique des boîtes en environnement fluctuant

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux perturbations aléatoires que peut subir la paire électron-trou de la boîte dans un environnement qui change constamment au cours du temps : nous allons décrire l'influence d'un réservoir fluctuant, auquel une paire électron-trou dans la boîte est couplée, sur la transition fondamentale interbande. Nous allons tout d'abord nous intéresser à celle d'un seul piège au voisinage de la boîte (impureté, défaut d'interface, cf chapitre 2) qui se charge et se décharge aléatoirement puis nous discuterons de l'influence d'un ensemble plus complexe de perturbations.

Notre motivation première est de calculer les formes de raies (spectre de PL, PLE) et pas seulement les positions énergétiques et les forces d'oscillateur des boîtes. Cela nous permettra d'évaluer comment ces perturbations vont venir élargir les transitions et ainsi raccourcir le temps de vie des cohérences.

On décrit dans la suite les principales suppositions et approximations utilisée :

- on s'intéressera aux perturbations extérieures 'faibles' qui peuvent être traitées dans une base d'états stationnaires confinés de la paire, où 'stationnaire' correspond à une configuration particulière de l'environnement. Toutefois, la réponse optique de la boîte (par exemple son spectre de PL) ne doit pas dépendre du choix initial de cet état, qui peut être arbitraire (par exemple, piège toujours occupé ou vide).
- De plus, on supposera que les fluctuations du grand système (l'environnement de la boîte¹) sont indépendantes des degrés de liberté du petit système (la boîte).
- La complexité du problème augmente très rapidement avec le nombre de configurations différentes de l'environnement. On se limitera initialement (sections 3.1 à 3.4) aux fluctuations engendrées par un piège dichotomique (évolution aléatoire entre deux configurations différentes) et on discutera brièvement à la fin (section 3.5) d'autres situations d'évolution aléatoire plus complexes.

Il est bien entendu difficile de justifier de la pertinence du modèle dichotomique pour décrire une situation expérimentale sûrement bien plus complexe. On

¹On utilisera parfois le terme 'réservoir'

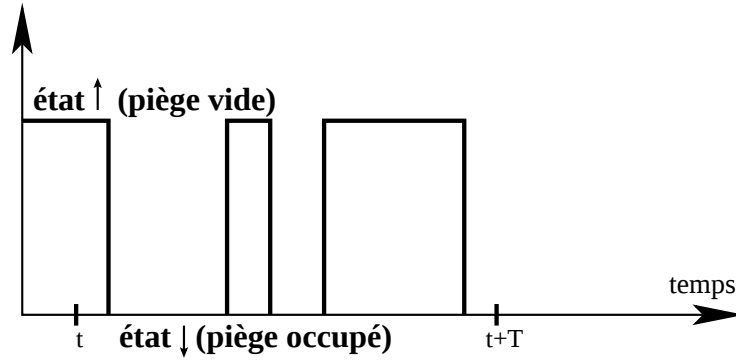


FIG. 3.1 – Illustration du processus du signal télégraphique

soulignera seulement qu'il comporte différents atouts :

- il incorpore le principal paramètre dynamique du problème, à savoir le taux de fluctuation du réservoir par rapport au temps caractéristique d'évolution du système,
- il permet la prise en compte d'une excitation optique interbande de la boîte, et donc de simuler, outre le spectre de PL, les spectres de PLE et d'absorption d'une boîte en environnement fluctuant,
- il mène à une solution quasi-analytique pour les différents spectres optiques (PL, PLE, absorption),
- il permet de traiter dans le même cadre le passage continu entre les régimes extrêmes d'un réservoir fluctuant très rapidement et très lentement, et donc de décrire de façon unifiée des situations aussi opposées que celles où le spectre de PL est complexe et dominé par des effets de *spectral wandering* ou bien caractérisée par une raie unique fine résultante des effets de *motional narrowing*.
- Finalement, on assimilera la boîte à un système électronique à deux ou trois niveaux : le fondamental (boîte vide) et un ou deux états excités (ou excitoniques)

Le modèle incorporant l'ensemble de ces approximations correspond au cadre minimum permettant l'étude de la réponse optique d'une boîte placée dans un environnement fluctuant.

3.1 Influence d'un piège sur la boîte

3.1.1 Modélisation mathématique

Pour la modélisation mathématique, nous allons utiliser un modèle binomial (ou méthode du signal télégraphique), dans lequel le système extérieur ne peut prendre que deux états : un état haut et un état bas (cf figure 3.1). Ces deux états peuvent correspondre par exemple pour l'état haut (état $\uparrow$) au cas où le piège est vide et pour l'état bas (état $\downarrow$) au cas où le piège est occupé (par un porteur ou par un exciton)

Notations

Nous introduisons deux temps caractéristiques pour notre étude : $\tau_{\uparrow}$ le temps de vie moyen de l'état haut et $\tau_{\downarrow}$ le temps de vie de l'état bas (il correspondent respectivement au temps caractéristiques de chargement et de déchargement du piège).

Soit $\hbar\Delta$ le décalage en énergie subit par la paire lorsque le potentiel induit par la particule étrangère à la boîte est 'branché' (particule piégée) (figure 3.2 page suivante).

Equations d'évolution

Les équations d'évolution des probabilités $\mathcal{P}_{\uparrow}$ et $\mathcal{P}_{\downarrow}$ que le piège se trouve dans l'état haut ou l'état bas sont :

$$\dot{\mathcal{P}}_{\uparrow} = -\frac{1}{\tau_{\uparrow}}\mathcal{P}_{\uparrow} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}\mathcal{P}_{\downarrow} \quad (3.1)$$

$$\dot{\mathcal{P}}_{\downarrow} = -\frac{1}{\tau_{\downarrow}}\mathcal{P}_{\downarrow} + \frac{1}{\tau_{\uparrow}}\mathcal{P}_{\uparrow} \quad (3.2)$$

Elles décrivent l'échange permanent entre les deux états possibles, ce qui se caractérise par :

$$\mathcal{P}_{\uparrow} + \mathcal{P}_{\downarrow} = 1 \quad (3.3)$$

Solutions stationnaires

Le système d'équations admet les solutions stationnaires suivantes :

$$\mathcal{P}_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\frac{1}{\tau_{\downarrow,\uparrow}}}{\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}} \quad (3.4)$$

indépendantes des conditions initiales.

Ces solutions ne décrivent pas le processus stochastique de la figure 3.1 page précédente. En fait, les probabilités de l'équations (3.4) déterminent seulement la valeur moyenne du processus (et donc la probabilité moyenne d'être dans un état ou l'autre) mais ne donne aucune information concernant les fluctuations du signal.

Prise en compte du processus stochastique

Pour une description plus complète du processus stochastique[35], on doit définir les densités de probabilité $\mathcal{W}_{\uparrow}$ pour que le piège libre à l'instant t le soit toujours à l'instant $t + T$:

$$\mathcal{W}_{\uparrow}(T) = \frac{1}{\tau_{\uparrow}} \exp\left(-\frac{T}{\tau_{\uparrow}}\right) \quad (3.5)$$

De même pour le piège occupé :

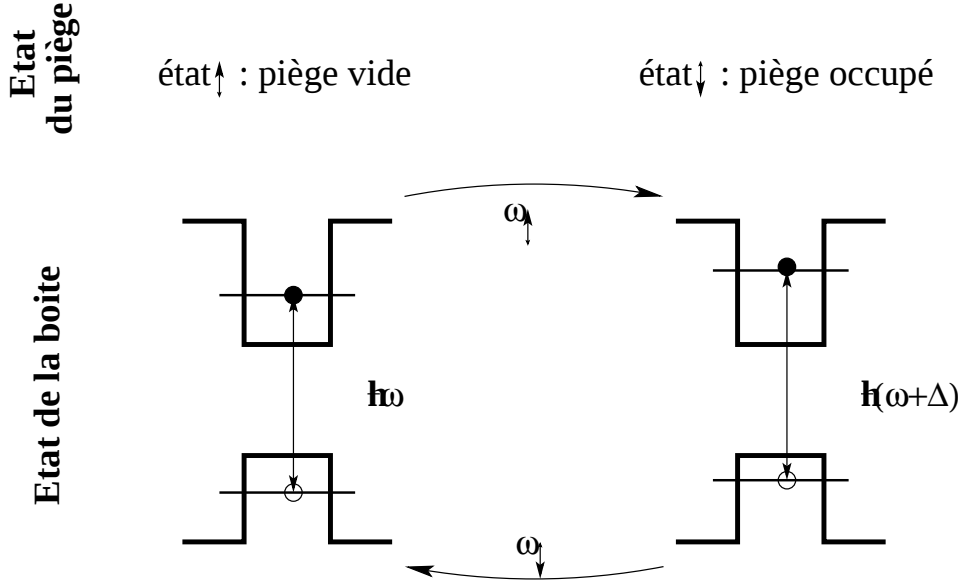


FIG. 3.2 – Illustration de l'influence d'un piège sur les niveaux d'énergie de la paire électron-trou de la boîte : $\omega_{\uparrow} = 1/\tau_{\uparrow}$; $\omega_{\downarrow} = 1/\tau_{\downarrow}$

$$\mathcal{W}_{\downarrow}(T) = \frac{1}{\tau_{\downarrow}} \exp\left(-\frac{T}{\tau_{\downarrow}}\right) \quad (3.6)$$

Ces densités de probabilité, ainsi que les solutions stationnaires qui nous donnent la probabilité moyenne d'être dans une configuration ou dans l'autre, vont être les ingrédients principaux pour le calcul de l'évolution de la matrice densité réduite du petit système.

3.1.2 Evolution de la matrice densité

On écrira l'hamiltonien du petit système comme :

$$H = H_0 + V_{per}(t) \quad (3.7)$$

où H_0 représente l'hamiltonien associé à un environnement 'moyen' statique, $V_{per}(t)$ le potentiel subi par les particules de la boîte lorsque l'environnement fluctue autour de son état 'moyen'.

On suppose initialement que l'opérateur V_{per} est diagonal et donc que la perturbation ne fait que changer les énergies des particules de la boîte sans induire de couplage entre les différents niveaux de la boîte et sans affecter l'état vide de la boîte. On suppose que les changements du réservoir (sauts quantiques) sont instantanés.

Le moyennage de la matrice densité sur tous les cas possibles (voir l'Annexe B.) devient alors un pur problème statistique incluant la transformation unitaire U qui détermine la dynamique du petit système entre deux changements du réservoir :

$$\rho(t) = U(t, t') \rho(t') U^{-1}(t, t') \quad (3.8)$$

Cet opérateur d'évolution est régi par l'équation de Schrodinger

$$i\hbar \frac{\partial U}{\partial t} = HU \quad (3.9)$$

Un calcul similaire à la référence[36] nous permet d'obtenir pour le cas d'un réservoir à deux états le système d'équation suivant (voir Annexe B.) :

$$\dot{\bar{\rho}}_{\uparrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\uparrow}, \bar{\rho}_{\uparrow}(\tau)] \quad (3.10)$$

$$\dot{\bar{\rho}}_{\downarrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\downarrow}, \bar{\rho}_{\downarrow}(\tau)] \quad (3.11)$$

où $\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau)$ (resp. $\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau)$) est la valeur moyenne de la matrice densité réduite lorsque le piège est vide (resp. lorsqu'il est occupé) à l'instant τ .

et

$$H_{\uparrow} = \begin{pmatrix} E_X & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; H_{\downarrow} = \begin{pmatrix} E_X + \hbar\Delta & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$$

dans le cas d'une boîte modélisée par un système à deux niveaux ($E_X = \hbar\omega$ en figure 3.2 page ci-contre). Dans ce cas, l'état 'moyen' du réservoir est choisi comme celui où le piège est vide ($\uparrow$).

Dans la suite, les grandeurs associées à la seule boîte seront obtenues à partir de ces matrices densités, en faisant une trace sur les états du réservoir. On définit :

$$\bar{\rho}(t) = \bar{\rho}_{\uparrow}(t) + \bar{\rho}_{\downarrow}(t) \quad (3.12)$$

dans le cas du modèle dichotomique.

3.2 Spectre

Nous allons tout d'abord généraliser le système d'équations (3.10)-(3.11) qui régit l'évolution d'un système électronique en interaction avec un réservoir fluctuant pour l'étude de situations où le système interagit avec le vide électromagnétique et avec un rayonnement incident monochromatique. Notre objectif est de comprendre les caractéristiques principales de la lumière que le système émet, aussi bien spontanément que lorsqu'il est optiquement excité.

3.2.1 Equations de Bloch optique

Les équations de Bloch Optique que nous allons considérer ici décrivent l'évolution de la matrice densité sous l'effet combiné du couplage dipolaire avec un champ classique monochromatique $V_{dip}(t)$, le couplage avec l'environnement fluctuants $V_{per}(t)$ et les couplages irréversibles éventuels (termes de relaxation) avec le vide électromagnétique (V_{rad}) et avec les vibrations du réseau ($V_{res}(t)$).

L'hamiltonien du système est alors

$$H = H_0 + V_{per}(t) + V_{dip}(t) + V_{res}(t) + V_{rad} \quad (3.13)$$

En considérant que les différents couplages contribuent séparément à l'évolution de la matrice densité, on obtient le système d'équations suivant :

$$\dot{\bar{\rho}}_{\uparrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\uparrow}, \bar{\rho}_{\uparrow}(\tau)] + \left(\frac{\partial \rho_{\uparrow}}{\partial t}\right)_{relax} \quad (3.14)$$

$$\dot{\bar{\rho}}_{\downarrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\downarrow}, \bar{\rho}_{\downarrow}(\tau)] + \left(\frac{\partial \rho_{\downarrow}}{\partial t}\right)_{relax} \quad (3.15)$$

où

$$H_{\uparrow} = \begin{pmatrix} E_X & \hbar\Omega \cos(\omega_L t) \\ \hbar\Omega \cos(\omega_L t) & 0 \end{pmatrix}; H_{\downarrow} = \begin{pmatrix} E_X + \hbar\Delta & \hbar\Omega \cos(\omega_L t) \\ \hbar\Omega \cos(\omega_L t) & 0 \end{pmatrix}$$

pour le cas d'un système à deux niveaux ($\hbar\Omega$ est le couplage dipolaire associé à la transition excitonique et ω_L est la pulsation de l'onde excitatrice).

Les quantités $\left(\frac{\partial \rho_{\uparrow}}{\partial t}\right)_{relax}$ et $\left(\frac{\partial \rho_{\downarrow}}{\partial t}\right)_{relax}$ tiennent compte de l'amortissement des cohérences ρ_{ij} (entre deux niveaux i et j) dû aux couplages irréversibles entre le système et le réservoir de photons ou phonons[19]. Dans ces termes, que l'on ajoute phénoménologiquement, on ne tient compte que des effets 'non-adiabatiques' : leurs expressions est la demi-somme des probabilité par unité de temps qu'a le système de quitter l'état i ou l'état j .

$$\Gamma_{ij} = \frac{1}{2} \left(\sum_{k \neq i} \Gamma_{i \rightarrow k} + \sum_{k \neq j} \Gamma_{j \rightarrow k} \right) \quad (3.16)$$

Cela traduit qu'un processus arrachant le système de l'état i ou j perturbe l'oscillation de toute grandeur physique sensible à ρ_{ij}

On a en outre des termes de relaxation pour les termes diagonaux ρ_{ii} (les populations) associés au transfert irréversible entre différents niveaux de la boîte induit par V_{rad} ou V_{res} .

La contribution 'adiabatique' due à des processus où le système ne change pas d'état tout en interagissant avec le réservoir qui lui change d'état est contenu dans la première partie des expressions (3.13) et (3.14). Nous avons supposé en outre que les corrections diagonales de V_{per} n'induisent pas de changement de la fonction d'onde de la paire confinée et donc de la force des couplages V_{dip} , V_{res} et V_{rad} .

Couplage avec la lumière

Dans la suite, nous serons amenés à discuter la réponse optique des boîtes quantiques pour des puissances d'excitation importantes. Il faut souligner que dans la pratique, pour des densités d'excitation croissantes, des pics additionnels peuvent apparaître progressivement dans les spectres expérimentaux, signature de la création de différents complexes excitoniques neutres (biexciton 2X) ou chargés (X- ou X2-). Ces nouvelles raies sont toutefois spectralement bien séparées de la raie à une paire

(voir les échelles en énergie de la figure 3.7 page 67). Nous n'en tiendrons pas compte dans les calculs.

Dans notre modèle, l'intensité d'excitation (I_{exc}) est contrôlée par le couplage dipolaire $\hbar\Omega$. Ces deux grandeurs sont reliées par l'expression

$$\hbar\Omega = \langle \Psi_v | \Psi_c \rangle \frac{eP}{m_0\omega_L} \sqrt{\frac{I_{exc}}{n_r\epsilon_0 c}} \quad (3.17)$$

où $P = |\langle S | p_x | X \rangle|$ est l'élément de matrice interbande ($E_p = 2P^2/m_0 \approx 23 \text{ eV}$ [3]), n_r l'indice de réfraction du milieu, c la vitesse de la lumière dans le vide et ϵ_0 la permittivité diélectrique du vide. $\langle \Psi_v | \Psi_c \rangle \approx 1$ est le recouvrement entre les parties enveloppes des états de valence et de conduction.

3.2.2 Propriété de la lumière émise par la boîte

Fonction de corrélation du dipôle

Une analyse des propriétés de la lumière émise repose sur l'étude des fonctions de corrélation du dipôle[19]. La transformée de Fourier de la fonction de corrélation à deux temps du champ $\vec{E}$ arrivant sur le détecteur

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} \langle E^{(-)}(\vec{r}, t + \tau) E^{(+)}(\vec{r}, t) \rangle \quad (3.18)$$

donne la densité spectrale du rayonnement telle qu'elle est mesurée par un photodétecteur à bande étroite (théorème de Wiener-Khintchine).

Ce champ est proportionnel aux cohérences du système entre deux niveaux i et j dont on souhaite étudier la lumière émise.

$$E^{(\pm)}(t) \propto \sigma_{\mp}^{ij}(t) \quad (3.19)$$

où

$$\langle \sigma_{-}^{ij}(t) \rangle = Tr[|j\rangle\langle i| \rho(t)] = \langle i | \rho(t) | j \rangle = \overline{\rho_{ij}}(t) \quad (3.20)$$

et

$$\langle \sigma_{+}^{ij}(t) \rangle = \overline{\rho_{ji}}(t) \quad (3.21)$$

Il vient donc que :

$$\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t + \tau) \rangle \propto \langle \sigma_{+}(t) \sigma_{-}(t + \tau) \rangle \quad (3.22)$$

Le fonction de corrélation à deux temps $\langle \sigma_{+}(t) \sigma_{-}(t + \tau) \rangle$ peut être calculée en utilisant le théorème de régression quantique.

En présence de fluctuations de l'environnement, il faudra tenir compte de l'état $\uparrow$ et $\downarrow$.

$$\langle \sigma(t) \rangle = \langle \sigma_{\uparrow}(t) \rangle + \langle \sigma_{\downarrow}(t) \rangle \quad (3.23)$$

en supposant qu'il n'y a pas d'interactions entre les deux états. Finalement, chaque matrice $\rho_{\uparrow,\downarrow}$ a une dimension $N \times N$, où N est le nombre d'états de la boîte retenus dans le calcul. Dans la suite, nous nous intéresserons à des modèles à $N = 2$ et $N = 3$ niveaux, en retenant l'état vide de la boîte, son premier état à une paire et éventuellement un état de paire excitée.

Théorème de régression quantique

Nous avons vu précédemment que les caractéristiques de la lumière émise par la recombinaison électron-trou étaient reliées à des moyennes à deux temps. Le théorème de régression quantique établit[19, 38] que la dynamique de ces moyennes à deux temps est déterminée par des équations tout à fait analogues aux équations de Bloch optiques donnant l'évolution des moyennes à un temps. Cela permet d'évaluer les corrélations à deux temps à partir des valeurs des différentes corrélations à un instant donné initial. Dans la pratique, il suffit de savoir évaluer $\overline{\rho_{\uparrow}}$ et $\overline{\rho_{\downarrow}}$ à tout instant et les différentes corrélations à l'instant initial pour pouvoir remonter aux propriétés optiques de la boîte.

Mise en oeuvre informatique

Dans l'approximation du 'repère tournant' pour V_{dip} , on peut écrire les équations de Bloch Optique sous la forme matricielle[38] :

$$\dot{R}(t) = -MR(t) + B \quad (3.24)$$

où $R(t)$ représente le vecteur des $N_{res} \times N \times N$ éléments des matrices densité des équation (3.13) et (3.14) ($N_{res} = 2$ pour un réservoir dichotomique), M représente une matrice d'évolution et B un vecteur constant qui apparaît lorsque l'on impose que la population totale est conservée :

$$\sum_{i=1}^N \overline{\rho_{ii}} = 1 \quad (3.25)$$

Afin de résoudre l'équation (3.24), on cherche dans un premier temps les vecteurs v_i et valeurs propres λ_i de la matrice M tel que :

$$Mv_i = \lambda_i v_i \quad (3.26)$$

A partir de la, on peut rassembler les résultats sous forme d'une matrice de vecteur propres V

$$V = (v_1, \dots, v_n) \quad (3.27)$$

matrice inversible par définition, et soit $V^{-1} = (\tilde{v}_1, \dots, \tilde{v}_n)$ son inverse.

On peut alors écrire, par integration de (3.24)

$$R(t + \tau) = \sum_i (\tilde{v}_i [R(t) - M^{-1}B] v_i e^{-\lambda_i \tau}) + M^{-1}B \quad (3.28)$$

Nous devons à partir de là, évaluer la fonction de corrélation à deux temps $\langle \sigma_+(t)\sigma_-(t+\tau) \rangle$. On multiplie le vecteur $R(t+\tau)$ à droite par $\sigma_+(t)$ et l'on obtient un système d'équations faisant intervenir la fonction de corrélation à deux temps qui nous intéresse.

Puisque cette fonction est indépendante de t , on peut s'intéresser aux solutions stationnaires. En effet, dans le cas des solutions stationnaires ($t \rightarrow \infty$), les valeurs obtenues sont indépendantes des conditions initiales : on utilise les conditions asymptotiques en guise de conditions initiales pour obtenir une évolution correcte des cohérences.

3.3 Système à 2 niveaux

3.3.1 Le spectre de PL en l' 'absence' d'excitation lumineuse

Le système d'équations (3.14) et (3.15) obtenu précédemment se résout facilement dans le cas où l'on n'introduit pas le couplage avec la lumière excitatrice ($V_{dip} = 0$). c'est la situation en expérience de PL non-résonnante.

Dans ce cas, les cohérences (termes non-diagonaux) de $\overline{\rho_{\uparrow,\downarrow}}(\tau)$ évoluent indépendamment des populations et sont données par deux contributions de la forme

$$A \exp(\omega_+ t) + B \exp(\omega_- t) \quad (3.29)$$

avec

$$\omega_{\pm} = -\frac{\Gamma_{rad}}{2} - \omega_{per} \pm \omega_{per} \left[1 - \left(\frac{\Delta}{2\omega_{per}} \right)^2 + i \left(\frac{\Delta}{\omega_{per}} \right) \left(\frac{\tau_{\downarrow} - \tau_{\uparrow}}{\tau_{\downarrow} + \tau_{\uparrow}} \right) \right]^{1/2} \quad (3.30)$$

où $\omega_{per} = \frac{1}{2}(\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}})$ est le taux moyen de fluctuation du réservoir et $1/\omega_{rad}$ est le temps de vie radiatif en l'absence ou en présence d'un champ.

Chaque exponentielle décroissante en temps engendre, via (3.18), une contribution de forme lorentzienne au spectre d'émission. Les parties réelles et imaginaires de $\omega_{\pm}$ déterminent respectivement les largeurs et les positions énergétiques de ces deux raies.

Lorsque la fréquence des fluctuations de l'environnement est faible ($\omega_{per} < \Delta/2$), on observe une séparation du spectre en deux, chaque pic étant attribué à chacun des deux cas possibles (piège occupé ou libre).

Lorsque les fluctuations deviennent plus importantes, les deux pics se rapprochent et fusionnent (figure 3.3 page suivante) pour une fréquence moyenne de fluctuation telle que :

$$\omega_{per} = \Delta/2 \quad (3.31)$$

Si les fluctuations sont très grandes ($\omega_{per} \gg \Delta/2$), on observe un seul pic dont l'élargissement va diminuer avec l'augmentation de la fréquence de variation du réservoir (voir figure 3.4 page suivante) : c'est un phénomène analogue à celui de *rétrécissement par le mouvement* observé en résonance magnétique nucléaire.

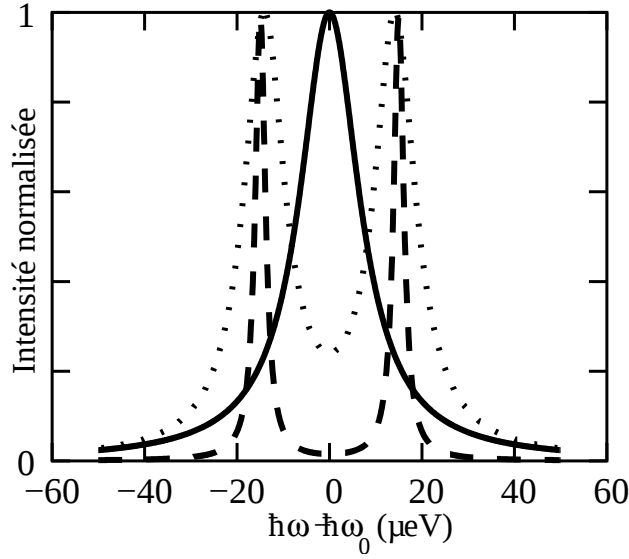


FIG. 3.3 – Fusion des deux pics de PL lorsque le taux ω_{per} de fluctuation du réservoir augmente. En ordonnée se trouve le décalage en énergie par rapport à l'énergie moyenne ($\hbar\omega_0$). Ici, le décalage $\hbar\Delta$ est de $30 \mu eV$. $\hbar\omega_{per} = 15 \mu eV$ en trait plein, $\hbar\omega_{per} = 5 \mu eV$ en pointillés et $\hbar\omega_{per} = 1 \mu eV$ en tirets (dans toutes les situations, $\hbar\Gamma^{rad} = 0.656 \mu eV$ ($1/\Gamma^{rad} = 1$ ns) et $\tau_{\uparrow} = \tau_{\downarrow}$)

Dans ce dernier régime, l'élargissement à mi-hauteur (FWHM) du spectre de PL est donné par (quand $\tau_{\uparrow} = \tau_{\downarrow}$) :

$$FWHM \approx \hbar(\Gamma^{rad} + \frac{(\Delta/2)^2}{\omega_{per}}) \quad (3.32)$$

Il en résulte que les deux situations opposées d'un environnement statique ou rapidement fluctuant engendrent le même spectre de PL, composée d'une raie unique fine et de forme lorentzienne. Il faut souligner que dans le dernier cas la FWHM peut être largement dominée par la correction associée aux fluctuations.

Comme nous le verrons plus loin (paragraphe 3.5.2), ces considérations générales restent valables en présence d'un environnement plus complexe.

Des résultats similaires ont déjà été obtenus précédemment[34] dans un autre formalisme, le processus de Kubo-Anderson. Dans cet article, Uskov *et al.* s'intéressent plus particulièrement à l'effet de capture d'un électron par la boîte sur le spectre d'émission de la paire électron-trou dans la boîte, en régime de fonctionnement laser (forte injection de porteurs dans le continuum de la boîte)

3.3.2 L'excitation résonante et le triplet de fluorescence

Notre modèle, puisqu'il est non-perturbatif vis-à-vis du champ incident, nous permet de traiter le système à deux niveaux sous l'influence d'une forte excitation. On suppose que le laser est placé à résonance quand il n'y a pas de fluctuations.

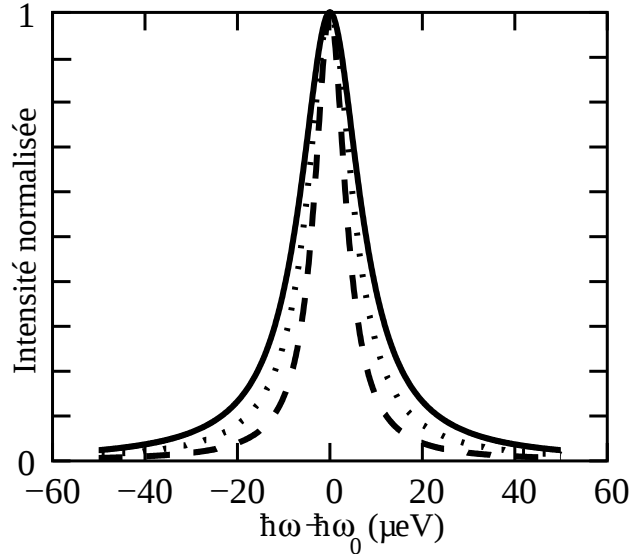


FIG. 3.4 – Illustration du rétrécissement de la raie de PL lorsque l’environnement fluctue rapidement ($\hbar\Delta = 30 \mu eV$). $\hbar\omega_{per} = 15 \mu eV$ en trait plein, $\hbar\omega_{per} = 20 \mu eV$ en pointillés et $\hbar\omega_{per} = 30 \mu eV$ en tirets, $\hbar\Gamma^{rad} = 0.656 \mu eV$ et $\tau_{\uparrow} = \tau_{\downarrow}$

Dans le cas où il n’y a pas de fluctuations (en trait plein sur la figure 3.5 page suivante), nous retrouvons le résultat bien établi du triplet de fluorescence pour un système atomique à deux niveaux : le spectre de la lumière émise est composé de trois pics séparés en énergie par $\hbar\Omega$ et dont les intensités relatives sont dans le rapport 1 : 3 : 1 [19, 38]. L’écartement croissant linéairement avec $\hbar\Omega$ est une signature d’un régime de couplage non-linéaire au champ laser.

Dans le cas de fluctuations (pointillés), on voit que la structure de triplet ne change pas et que les positions ainsi que l’élargissement des différents pics sont très peu modifiés. Seules les intensités relative changent : l’effet principal du détuning induit par les fluctuations du réservoir est d’affecter le rapport 1 : 3 : 1 des intensités relatives. Ce résultat est important, puisqu’il démontre la robustesse de la réponse optique en régime de couplage fort à des fluctuations de l’environnement.

3.4 Système à 3 niveaux

Ce système va nous permettre de calculer les spectres de PL et de PLE sous faible (spectres usuels) et forte (faisant apparaître un doublet de Mollow[39]) excitations

Désormais, nous allons considérer un système à 3 niveaux dans lequel on incorpore un canal de relaxation (défini par son taux de relaxation Γ) entre les deux niveaux excitoniques $|e_1\rangle$, $|e_2\rangle$ de la boîte : on étudie la lumière émise lors de la transition entre le premier niveau excité $|e_1\rangle$ et le niveau fondamental $|g\rangle$ suite à une excitation monochromatique autour de la transition $|g\rangle \rightarrow |e_2\rangle$. Les différents paramètres intervenant dans l’étude sont indiqués dans la figure 3.6 page suivante :

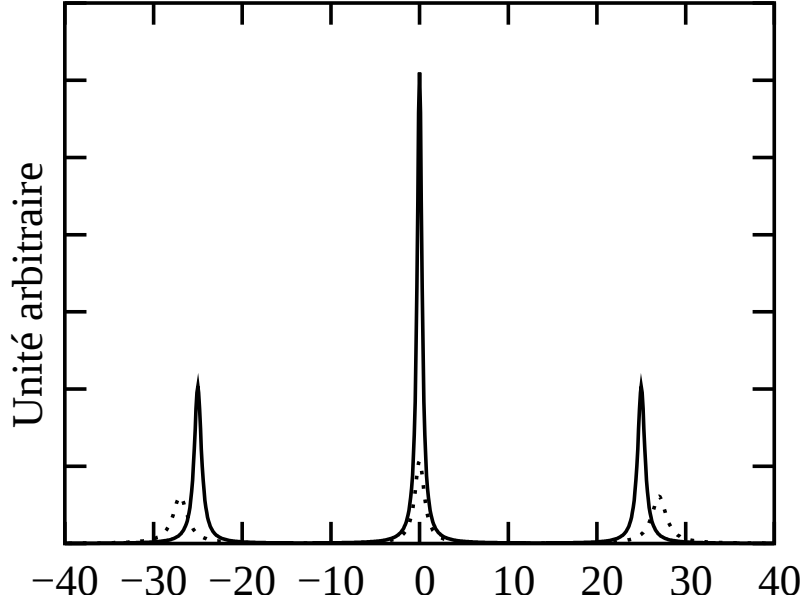


FIG. 3.5 – Triplet de fluorescence : en trait plein se trouve le spectre émis dans le cas des fluctuations ($\hbar\Delta = 20 \mu eV$, $\hbar\omega_{per} = 5 \mu eV$) et en tiret, le cas sans fluctuations, $\hbar\Omega = 25 \mu eV$

$\hbar\Omega$ caractérise l'énergie de Rabi du champ laser, Γ_1^{rad} et Γ_2^{rad} caractérisent les taux de relaxation radiatif respectivement du premier niveau excité et du second niveau excité.

3.4.1 Simulation de PL

Les équations couplées obtenues précédemment nous conduisent à un système de 18 équations à résoudre lorsque l'on considère un système à trois niveaux. En suivant la méthode développée par Mollow[39], on observe que ce système peut être séparé en deux sous-systèmes : un faisant intervenir les cohérences entre les niveaux $|g\rangle$, $|e_1\rangle$ et les niveaux $|e_1\rangle$, $|e_2\rangle$ et un second comprenant les autres variables (populations, cohérence entre les niveaux $|g\rangle$ et $|e_2\rangle$).

Afin de déterminer la forme du spectre de PL, on s'intéresse au sous-système formé par les cohérences entre les niveaux $|g\rangle$, $|e_1\rangle$ et les niveaux $|e_1\rangle$, $|e_2\rangle$.

Ce spectre est particulièrement simple dans les deux régimes opposés de 'faibles' et de 'fortes' excitations.

Faibles excitations

Dans le cadre des 'faibles' excitations (voir paragraphe 3.4.2), nous obtenons le même résultats que pour le système à deux niveaux. En effet, le rôle unique joué par l'excitation laser est d'alimenter le niveau excité $|e_1\rangle$, via la relaxation Γ sans avoir une quelconque influence sur la forme du spectre : nous nous trouvons dans le cas d'un PL non-résonante (3.3.1).

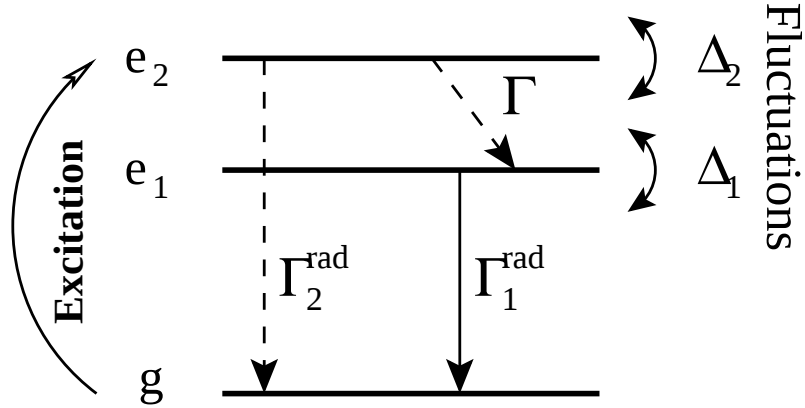


FIG. 3.6 – Les différents paramètres pris en compte dans le cas du système à 3 niveaux

Fortes excitations

De récentes expériences[37] ont permis d'observer le spectre d'émission d'une boîte quantique unique dans le cas de fortes puissances d'excitations : on voit l'apparition d'un doublet dont la séparation augmente avec la puissance laser. Ce résultat est attribué au couplage fort des états excitoniques avec le champ laser.

Considérons le cas où l'état fondamental $|g\rangle$ et l'état excité $|e_2\rangle$ correspondent à des états couplés par un champ laser intense.

La représentation schématique du système excitonique à deux niveaux sous l'influence de fortes excitations est donnée à la figure 3.7 page précédente dans le formalisme de l'atome habillé[19]. Considérons une paire d'états $|g\rangle + n\hbar\omega_L$ et $|e_2\rangle + (n-1)\hbar\omega_L$ (état de la multiplicité m_n). Leurs énergies propres sont très proches lorsque l'on se trouve près de la résonance. Sous l'effet d'un champ laser intense, ils se couplent pour former un nouveau système d'états $|\alpha_n\rangle$ et $|\beta_n\rangle$. La différence d'énergie entre ces deux états correspond à un intervalle $\Delta E(\omega_L)$ donné par $\Delta E(\omega_L) = \hbar[(\omega_L - \omega_{g \rightarrow e_2})^2 + \Omega^2]^{1/2}$ où ω_L représente la fréquence laser, $\hbar\omega_{g \rightarrow e_2} = E_{|e_2\rangle} - E_{|g\rangle}$ l'énergie de transition $|g\rangle \rightarrow |e_2\rangle$.

Maintenant, considérons le cas où nous avons un troisième niveau $|e_1\rangle + (n-1)\hbar\omega_L$ (associé à la multiplicité m_n) peuplé par les niveaux supérieurs (α_n, β_n) . Dans ce cas, l'émission spontanée de l'état $|e_1\rangle$ est un doublet séparé par une énergie $\Delta E(\omega_L)$: c'est le spectre de Mollow.

3.4.2 Compétition entre relaxation et couplage avec la lumière

Nous allons étudier plus en détail l'évolution du spectre de PL lorsque l'on augmente la puissance d'excitation. Cela nous permettra de mettre en évidence les effets de compétition entre relaxation et couplage avec la lumière.

Pour obtenir ces courbes, nous avons simulé une excitation résonante telle que $\hbar\omega_L = E_{|e_2\rangle} - E_{|g\rangle}$ avec une détection autour de $E_{|e_1\rangle} - E_{|g\rangle}$

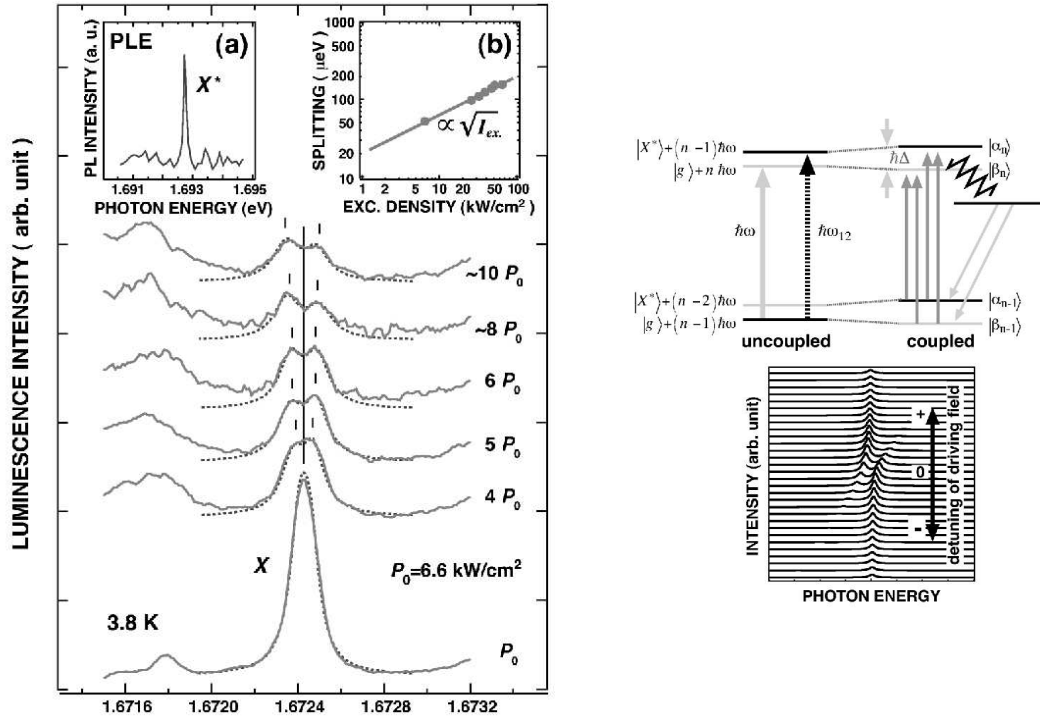


FIG. 3.7 – Spectre de luminescence d’une boîte unique pour différentes puissances d’excitation (à gauche), représentation schématique d’une paire d’états excitoniques sous l’effet d’un champ laser intense (en haut à droite) et spectre d’émission calculé en fonction du détuning du laser (en bas à droite)[37]

Evolution du spectre avec la puissance d'excitation

Les figures 3.8 et 3.9 page 70 montrent l'évolution du spectre de PL en fonction de la puissance d'excitation pour une valeur du taux de relaxation Γ égale à $110 \mu\text{eV}$ (ce qui correspond à un temps de relaxation d'environ 6 ps). Aux faibles excitations ($\Omega < \Gamma/2$), on observe un seul pic dont la largeur augmente continument avec Ω depuis la valeur $\approx \hbar\Gamma_1^{rad}$ lorsque $\Omega \approx 0$ jusqu'à la valeur $\approx \hbar\Gamma/2$ lorsque $\Omega \rightarrow \Gamma/2$ (figure 3.9 page 70).

Dans ce régime d'excitation faible, l'élargissement (FWHM) de l'unique pic est alors donné par :

$$\Gamma_1^{rad} + \frac{\Omega^2}{\Gamma} \quad (3.33)$$

L'excitation est forte lorsque

$$\Omega > \frac{\Gamma + \Gamma_2^{rad}}{2} \approx \frac{\Gamma}{2} \quad (3.34)$$

Dans ce cas, on observe l'apparition de deux pics dans le spectre dont la séparation augmente continument avec Ω et tend asymptotiquement vers $\hbar\Omega$ lorsque $\hbar\Omega \rightarrow \infty$ (figure 3.8) et dont les largeurs sont identiques, égales à

$$\Gamma_1^{rad} + \frac{\Gamma + \Gamma_2^{rad}}{2} \quad (3.35)$$

et indépendante de $\hbar\Omega$ (figure 3.9 page suivante).

On trouve ainsi qu'en régime de faible excitation la réponse optique est linéaire, puisque l'on calcule un spectre de PL contenant un seul pic (lorentzien) de largeur croissant linéairement avec I_{exc} ($\propto \Omega^2$).

Sous forte excitation, par contre, elle est à plus d'un égard non-linéaire : on observe l'apparition de deux pics, dont l'écartement augmente sub-linéairement avec l'intensité d'excitation et les élargissements ne dépendent plus de I_{exc} . Il faut finalement souligner que le passage entre ces deux régimes se fait de manière abrupte, pour I_{exc} autour de $\Omega \approx \Gamma/2$.

On décrira dans la suite un modèle simple permettant de retrouver ces deux régimes de couplage faible et fort au champ laser.

Interprétation de l'évolution du spectre de PL : couplage d'un état discret avec un continuum de largeur finie²

Si on considère un système dont les niveaux d'énergie sont discrets, lorsque ce système est en interaction avec un deuxième système, deux situations très différentes se présentent selon que les états du second système forment un continuum large ou sont discrets. Dans le premier cas, l'énergie se dissipe vers le continuum suivant une loi exponentielle au cours du temps. Cette situation correspond à un 'couplage faible' entre l'état discret initial et le continuum. Dans le deuxième cas, nous avons

²On suppose que $\Gamma \gg \Gamma_2^{rad}$, sinon dans toutes les expressions de ce paragraphe, il faut remplacer Γ par $\Gamma + \Gamma_2^{rad}$

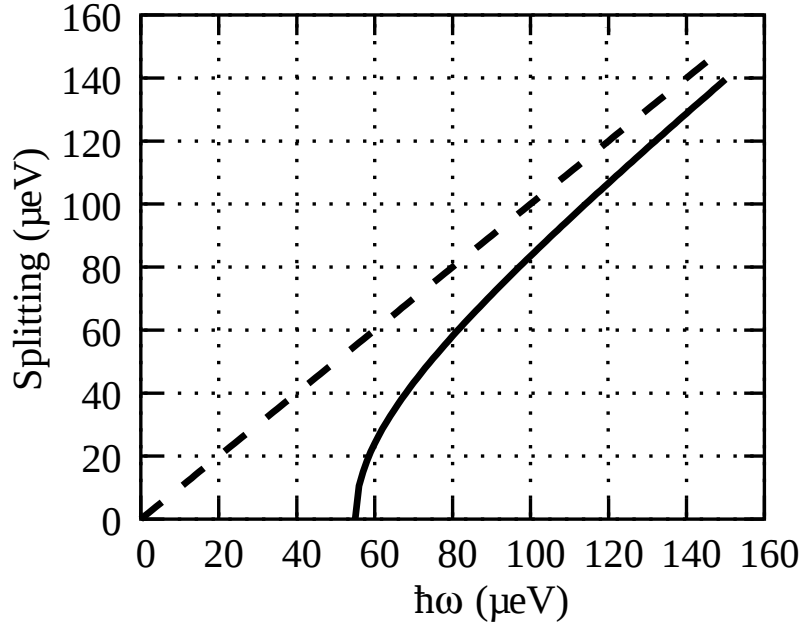


FIG. 3.8 – Evolution du splitting (en trait plein) en fonction de l'énergie de rabi $\hbar\Omega$ pour une valeur $1/\Gamma = 6$ ps. En tiret (pour comparaison) le splitting ($= \hbar\Omega$) lorsque $\Gamma \rightarrow 0$; $\hbar\Gamma_{1,2}^{rad} = 0.656 \mu\text{eV}$

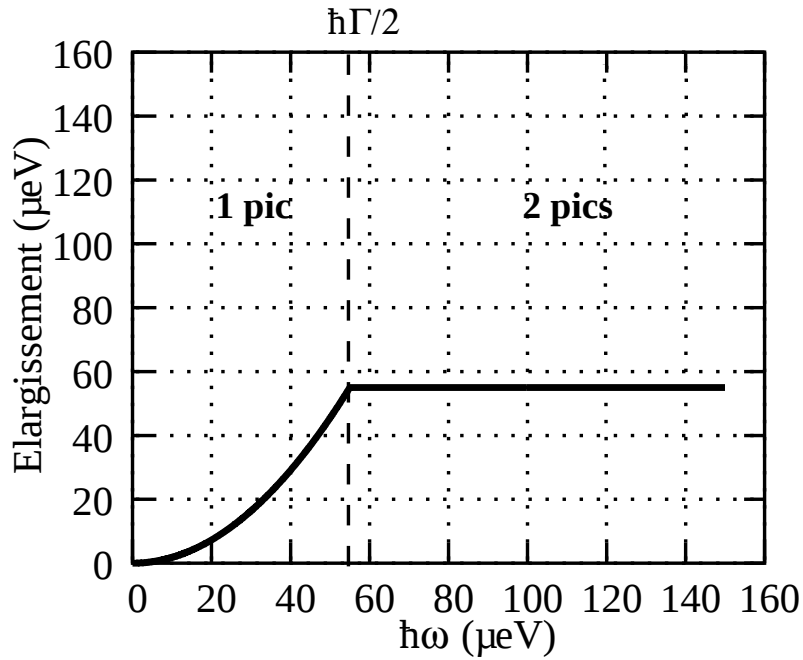


FIG. 3.9 – Evolution de l'élargissement du pic (partie croissante de la courbe) ou des pics (partie constante) de PL. $\hbar\Gamma = 110 \mu\text{eV}$

un couplage entre des états discrets, et l'interaction mélange les états des deux systèmes. On est en régime de couplage fort et les nouveaux états propres sont des états mixtes, séparés en énergie par deux fois l'énergie d'interaction (dans le cas d'un couplage résonnant entre deux niveaux).

Maintenant, si on fait interagir un niveau discret avec un continuum de largeur finie, on obtient l'un ou l'autre des régimes cités précédemment suivant la valeur du rapport $\eta = V/\Delta$ où V représente la force du couplage entre le niveau discret et les états du continuum et Δ la largeur du continuum.

On considère la situation résonnante (niveau discret placé à l'intérieur du continuum de largeur finie).

Couplage faible : $\eta \ll 1$

Dans notre cas, le continuum est constitué du niveau excité $|e_2\rangle$ élargi par le taux de relaxation Γ et le taux d'émission spontanée Γ_2^{rad} que l'on considère comme négligeable ($1/\Gamma^{rad} \approx 1$ ns, et $1/\Gamma \approx 6$ ps)). La densité des états accessibles de ce continuum est telle que :

$$\rho(\epsilon) = \frac{1}{\pi} \frac{\hbar\Gamma/2}{\frac{\hbar^2\Gamma^2}{4} + \epsilon^2} \quad ; \quad \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\epsilon) d\epsilon = 1 \quad (3.36)$$

La probabilité de transition par unité de temps Γ' , de l'état discret $|g\rangle$ vers l'état $|e_2\rangle$ élargi, via le couplage dipolaire, est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma' = \frac{2\pi}{\hbar} |V_{fi}|^2 \rho(\epsilon) \quad (3.37)$$

où V_{fi} représente l'élément de matrice du couplage dipolaire entre l'état final et l'état initial, ici :

$$V_{fi} = \frac{\hbar\Omega}{2} \quad (3.38)$$

A résonance, on a :

$$\Gamma' = \frac{2\pi}{\hbar} |V_{fi}|^2 \rho(0) = \frac{\Omega^2}{\Gamma} \quad (3.39)$$

Ce résultat est à comparer avec celui obtenu pour une puissance d'excitation faible (équation (3.33)). Cela mène à l'interprétation suivante pour le spectre de PL :

Γ' correspond à l'élargissement de l'état initial $|g\rangle$ à cause de son couplage dipolaire avec l'état élargi $|e_2\rangle$. Le spectre de PL à faible excitation mesure la largeur de ce même état $|g\rangle$, en tant qu'état final de la transition radiative interbande.

Couplage avec un continuum plat : $\eta \gg 1$

Pour la discussion, je renvoie à la référence[19] et à la thèse d'Olivier Verzelen[14] qui traite complètement ce cas.

Dans le cas où la largeur du continuum peut être négligée, on se trouve dans un régime de couplage fort avec un splitting qui suit la loi :

$$\hbar\sqrt{\Omega^2 - \frac{\Gamma^2}{4}} \xrightarrow{\Omega \rightarrow \infty} \hbar\Omega \quad (3.40)$$

Dans ce cas, le couplage résonant entre $|g\rangle$ et $|e_2\rangle$ par le laser monochromatique cause une modification profonde des états énergétiques, engendrant l'apparition d'états mixtes matière-lumière, qui bénéficient d'une représentation particulièrement claire dans le cadre d'une description en termes de transitions habillées. Dans ce régime, le spectre de la PL $|e_1\rangle \rightarrow |g\rangle$ est marqué par l'apparition d'un doublet de Rabi caractéristique du couplage fort affectant le niveau $|g\rangle$.

3.4.3 Fluctuations et fortes puissances d'excitation

Pour des fluctuations rapides ($\omega_{per} > \Delta_1/2, \Delta_2/2$, régime du rétrécissement par le mouvement pour les deux transitions considérées) l'évolution du spectre est la même que dans le cas sans fluctuations avec une correction sur l'élargissement des pics

$$\Gamma_1^{rad} + \frac{\Omega^2}{\Gamma + \Gamma_2^{rad}} \rightarrow \Gamma_1^{rad} + \frac{\Omega^2}{\Gamma + \Gamma_2^{rad} + \frac{(\Delta_2/2)^2}{\omega_{res}}} + \frac{(\Delta_1/2)^2}{\omega_{res}} \quad (3.41)$$

pour une puissance d'excitation 'faible' par rapport au taux de relaxation (voir l'expression (3.33)) et

$$\Gamma_1^{rad} + \frac{\Gamma + \Gamma_2^{rad}}{2} \rightarrow \Gamma_1^{rad} + \frac{(\Delta_1/2)^2}{\omega_{res}} + \frac{\Gamma + \Gamma_2^{rad} + \frac{(\Delta_2/2)^2}{\omega_{res}}}{2} \quad (3.42)$$

lorsque la puissance d'excitation est 'forte' (voir l'expression (3.35))

Le rôle joué par des fluctuations lentes est de détuner le laser par rapport à la transition $|e_2\rangle$ et donc d'induire un splitting au niveaux de l'état fondamental légèrement différent de $\hbar\Omega (= \hbar(\Delta_L^2 + \Omega^2)^{1/2})$ ou Δ_L correspond à la fréquence du détuning, voir [19] et paragraphe 3.4.1) et d'obtenir jusqu'à quatre pics dans le spectre pour un modèle 'dichotomique' (en trait plein sur la figure 3.10 page suivante).

La détermination de la position énergétique et de l'élargissement des pics est alors difficile à effectuer car fonction de plusieurs paramètres (détuning de l'état $\uparrow$ et de l'état $\downarrow$, temps de vie $\tau_\uparrow$ et $\tau_\downarrow$ de chacun des états du réservoir, rapport entre les décalages en énergie des deux niveaux excités considérés $\hbar\Delta_1$ et $\hbar\Delta_2$).

Le rôle joué par la relaxation (taux Γ) de l'état excité vers le fondamental est de 'tuer' l'influence des fluctuations du niveau $|e_2\rangle$ sur la forme du spectre de PL (voir la figure 3.10 page ci-contre en tiret et en pointillés).

En effet, lorsque $\Gamma \rightarrow \infty$, $\Gamma + \Gamma_2^{rad} + \frac{(\Delta_2/2)^2}{\omega_{res}} \approx \Gamma$. Le rôle des fluctuations sur le niveau $|e_2\rangle$ n'apparaissent plus (expressions (3.40) et (3.41)) lorsque les fluctuations sont rapides de même lorsqu'elles sont lentes (voir figure 3.10 page suivante) : on observe un passage d'un spectre à 4 pics vers un spectre à 2 pics séparés par le décalage en énergie du premier niveau excité pour un taux de relaxation croissant.

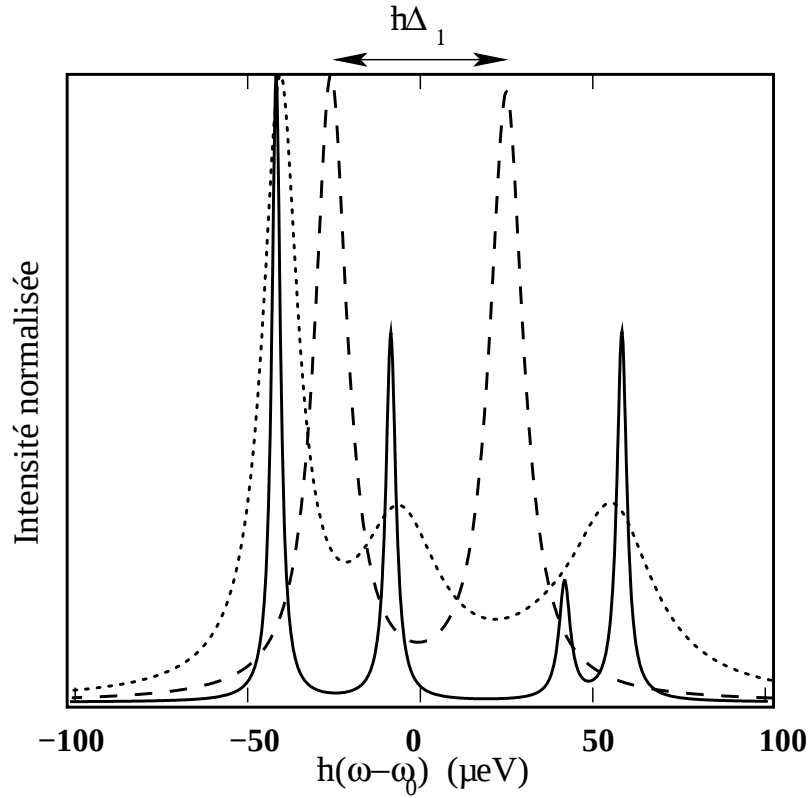


FIG. 3.10 – Evolution du spectre de PL en fonction du taux de relaxation Γ : en trait plein, $\hbar\Gamma = 1 \mu eV$, en pointillés $\hbar\Gamma = 50 \mu eV$, en tirets $\hbar\Gamma = 200 \mu eV$; le laser est fixé à la résonance avec l'état excité lorsqu'il n'y a pas de fluctuations, $\hbar\Delta_1 = 50 \mu eV$, $\hbar\Delta_2 = 40 \mu eV$, $\hbar\Gamma_{1,2}^{rad} = 0.656 \mu eV$, $\hbar\omega_{per} = 3.25 \mu eV$ (200 ps), $\hbar\Omega = 67 \mu eV$ (ce qui correspond à une puissance laser de 10 kW/cm², voir expression (3.16))

3.4.4 Simulation de PLE

Notre système à 3 niveaux permet également la simulation d'une expérience de PLE. Dans ce cas, on mesure l'intensité de la PL (à une énergie de détection fixée ou intégrée sur une petite fenêtre spectrale) comme fonction de l'énergie d'excitation. Cela permet d'accéder (indirectement) à la largeur de la transition excitée. Toutefois, dans une telle expérience, le laser peut être assimilé à une 'sonde' non-perturbative seulement dans la limite de faible excitation ($\hbar\Omega \rightarrow 0$). La largeur obtenue en PLE est dans ce régime une propriété intrinsèque au seul système électronique (égale, dans notre modèle, à approximativement $\Gamma_2^{rad} + \Gamma$).

Le spectre de PLE pour des puissances d'excitation importantes diffère de celui qu'on aurait pu attendre pour un niveau seulement élargi par le couplage radiatif et les processus de relaxation.

Ce point est illustré figure 3.11 obtenue en intégrant le signal de détection dans une large fenêtre d'énergie (spectro 'ouvert') autour de la transition fondamentale. On obtient un spectre de PLE 'intégré' de forme lorentzienne de largeur à mi-hauteur donnée par l'expression :

$$FWHM \approx \hbar[\Gamma^2 + \Gamma\Omega^2/\omega_{rad}]^{1/2} \quad (3.43)$$

Comme le montre cette expression, la largeur augmente lentement ($\propto \Omega^2$) pour des puissances d'excitation faibles et devient proportionnel à la fréquence de Rabi pour des valeurs d'excitation élevées avec un coefficient de proportionnalité dépendant du taux de relaxation Γ . Cette augmentation linéaire de la largeur du spectre mesuré comme fonction de la fréquence de Rabi, reflète le régime de couplage non-perturbatif de la transition excitée avec le laser monochromatique.

Comme précédemment pour le spectre de PL, il faut noter que cette largeur augmente initialement linéairement et ensuite seulement sub-linéairement avec l'intensité d'excitation, puisque $\Omega \propto \sqrt{I_{exc}}$ (échelle en haut de la figure 3.11). Par contre, contrairement à la transition abrupte observée pour le spectre de PL (figures 3.8 et 3.9 page 70) entre les régimes de couplage faible et couplage fort, le spectre de PLE évolue de façon monotone et la transition entre ces deux régimes est bien plus douce.

3.4.5 Discussion

Nous avons obtenu dans le cadre du modèle à trois niveaux que les positions et largeurs des spectres de PL et PLE évoluent de façon considérable avec les paramètres expérimentaux. En particulier, les élargissements dans le régime de couplage faible à la lumière sont linéaires avec l'intensité d'excitation (voir les équations (3.33), (3.41) et (3.43)). On serait bien tenté d'interpréter un tel comportement expérimental comme dû à une croissante probabilité d'excitation de porteurs 'libres', lesquels contribueraient aux effets de fluctuations électrostatiques discutés en chapitre 2 et donc à l'élargissement des transitions de la boîte quantique. Dans notre modèle, par contre, les fluctuations du réservoir sont indépendantes de la puissance laser et l'augmentation linéaire calculée est due à un pur effet type 'optique quantique' dans le cadre d'un couplage dipolaire.

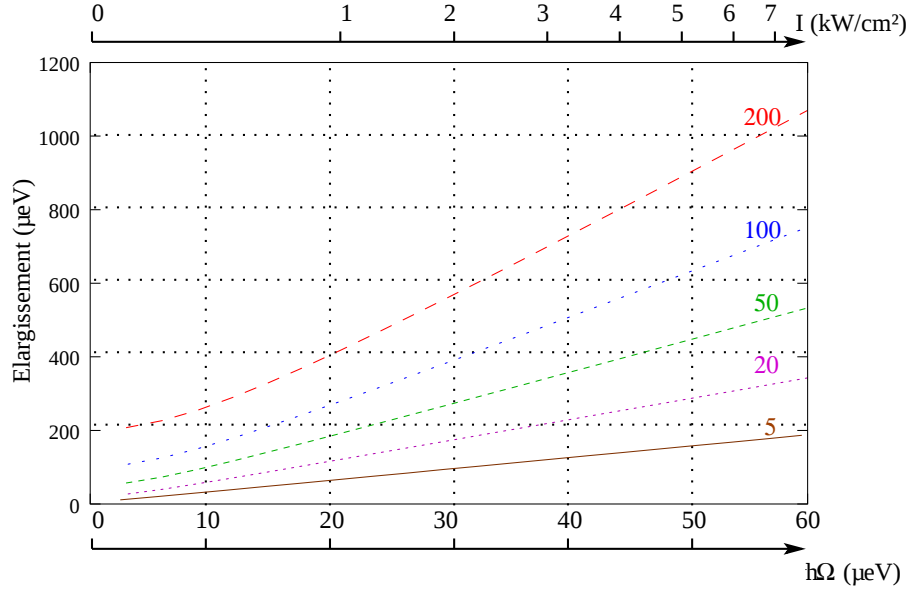


FIG. 3.11 – Elargissement de PLE pour différentes valeurs de $\hbar\Gamma$ en fonction de l'énergie de rabi $\hbar\Omega$ (en bas) ou de l'intensité I du laser correspondante (en haut). On observe l'élargissement en fonction de $\hbar\Omega$ pour différentes valeurs de $\hbar\Gamma$ (5, 20, 50, 100, 200 μeV)

3.5 Cas général

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser au cas plus général, celui d'un nombre arbitraire de pièges. Les temps impliqués dans l'étude balayent une échelle de temps plus importante que ceux rencontrés lors de l'étude des pièges dichotomiques.

3.5.1 Fluctuations engendrées par un ensemble de pièges équivalents

Considérons un ensemble de pièges 'équivalents' : la contribution de chaque piège dans le décalage en énergie de la transition électron-trou de la boîte étant égale à ω_0 . Notons τ_0 le temps moyen de changement de la configuration électrostatique de l'environnement de la boîte.

A l'équilibre thermodynamique, la configuration électrostatique autour de la boîte engendre une certaine correction sur la transition de la paire électron-trou de la boîte. On suppose que l'écart à cette configuration est très faible au cours du temps.

Au bout d'un temps $t = n\tau_0$, il y'a eu $n_\downarrow$ événements d'occupation d'un piège préalablement vide et $n_\uparrow$ événements de libération d'un piège. Ici, $n_\downarrow$ et $n_\uparrow = n - n_\downarrow$ sont aléatoires. La probabilité correspondante est

$$p(n_\downarrow, n_\uparrow) = \frac{1}{2^n} \frac{n!}{n_\downarrow! n_\uparrow!} \quad (3.44)$$

elle présente un maximum pour $n_{\downarrow} \approx n_{\uparrow}$ et se réduit dans l'approximation de Stirling, pour $\Delta n = |n_{\downarrow} - n_{\uparrow}| \ll n$, à la loi de Gauss

$$p(n_{\downarrow}, n_{\uparrow}) \approx \sqrt{\frac{2}{\pi n}} e^{-\Delta n^2/2n} \quad (3.45)$$

la contribution dans le décalage en énergie de la transition de la boîte lorsqu'il y a un écart Δn par rapport au nombre de pièges occupés à l'équilibre est $\Delta\omega = \omega_0 \Delta n$. Notons $(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2}$ le paramètre de dispersion en énergie du phénomène :

$$(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2} = \omega_0 (\overline{\Delta n^2})^{1/2} = \omega_0 \sqrt{2n} \quad (3.46)$$

Dans le cas d'une perturbation adiabatique, en suivant les calculs de la référence[36], on établit que l'évolution des cohérences dans l'approximation du champ tournant (par rapport à la configuration électrostatique moyenne) est :

$$X(\tau) = e^{-\tau/\tau_0} R(\tau, 0) + \frac{1}{\tau_0} \int R(\tau, t) e^{-(\tau-t)/\tau_0} X(t) dt \quad (3.47)$$

où $X(\tau)$ représente l'évolution des cohérences normalisée (cf[36]) et

$$R(\tau, t) = \int_{\alpha} \exp(i \int_t^{\tau} \Delta\omega(\alpha, t) dt) dW(\alpha) \quad (3.48)$$

avec $\Delta\omega(\alpha, t)$ représentant le décalage en énergie (par rapport à l'énergie de référence) de la configuration α à l'instant t et $dW(\alpha)$ représentant la densité de probabilité d'être dans cette configuration.

Ici,

$$\Delta\omega = \omega_0 \Delta n \quad (3.49)$$

représente l'écart par rapport à l'énergie moyenne,
et

$$dW(\alpha) = \sqrt{\frac{1}{2\pi n}} e^{-\Delta n^2/2n} \quad (3.50)$$

Ce calcul nous permet de dégager des résultats analytiques pour deux situations limites suivant la valeur de :

$$\int \Delta\omega dt \approx (\overline{\Delta\omega^2})^{1/2} \tau_0 \quad (3.51)$$

qui représente l'accumulation moyenne de phase au cours d'un changement³.

- (i). le cas des fortes perturbations : $(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2} \tau_0 \gg 1$
- (ii). le cas des faibles perturbations : $(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2} \tau_0 \ll 1$

(i). *Forte perturbation*

La perturbation est forte car l'accumulation moyenne de phase entre deux changements est très importante.

³qui n'est autre que le produit de τ_0 par la variance de la distribution en énergie

La distribution des composantes constituant le spectre est gaussienne, et chacune des composantes est lorentzienne avec une largeur augmentant avec $1/\tau_0$. Cette situation est comparable à celle décrite précédemment dans le cas où lorsqu'on ne tient compte que d'un seul piège, $\omega_{per} < \Delta_1/2$. Le contour final du spectre dépend de la distribution du décalage en énergie.

(ii). *Faible perturbation*

Lorsque l'environnement fluctue de plus en plus rapidement, le contour du spectre devient lorentzien, avec une demi-largeur à mi-hauteur (HWHM) égale à [36] :

$$\frac{1}{2} \overline{\Delta\omega^2} \tau_0 \quad (3.52)$$

Nous retrouvons une nouvelle fois le phénomène du *rétrécissement par le mouvement*

Remarque 1

Dans le modèle précédent, on a utilisé le modèle de la marche aléatoire à une dimension (mouvement brownien à une dimension) pour obtenir une distribution gaussienne du décalage en énergie ressenti par la paire électron trou de la boîte. Dans ce modèle, la dispersion est une fonction dépendant du temps. Ici, nous avons considéré que le nombre de changements intervenus pendant le temps de vie radiatif de la paire électron-trou de la boîte (fonction du temps moyen de changement τ_0 et du temps de vie radiatif τ_{rad}) est fixé.

Remarque 2

D'après (3.31), dans le cas où l'on ne considère qu'un seul piège dont les fluctuations sont très rapides par rapport au décalage en énergie subi par la paire électron-trou de la boîte ($\omega_{per} > \Delta/2$), situation de *rétrécissement par le mouvement* (ou de faible perturbation, cas (ii) dans le paragraphe 3.5.1) le $\overline{\Delta\omega^2}$ défini en (3.46) est :

$$\Delta\omega^2 = \mathcal{P}_\uparrow \left(0 - \frac{\mathcal{P}_\downarrow}{2}\right)^2 + \mathcal{P}_\downarrow \left(\Delta - \frac{\mathcal{P}_\downarrow}{2}\right)^2 \quad \text{et} \quad \tau_0 = \frac{1}{\omega_{res}} \quad (3.53)$$

Comme déjà dit, cette valeur représente la somme des carrés du décalage en énergie par rapport à la configuration moyenne⁴ pondérés par les probabilités d'être dans la configuration associé au décalage considéré.

Dans le cas où $\tau_\uparrow = \tau_\downarrow$, on obtient $\Delta\omega^2 = (\Delta/2)^2$ et puisque $\tau_0 = 1/\omega_{per}$, la relation (3.32) est bien consistante avec la relation (3.52).

3.5.2 Distribution quelconque

Nous allons décrire brièvement dans cette section, une méthode permettant la simulation de l'influence de l'environnement aléatoire sur les boîtes. Cette méthode est utile car elle permet de calculer la réponse optique d'une boîte dans n'importe quel

⁴ $= \mathcal{P}_\uparrow 0 + \mathcal{P}_\downarrow \Delta$ dans le cas où l'énergie de référence (=0) est prise par rapport à la configuration piège vide

cas pour peu que l'on sache simuler la variable aléatoire. Dans ce cas, la méthode de Monte Carlo discutée ci-dessous permet de décrire très rapidement un algorithme permettant l'évaluation de ce phénomène. Ces méthodes sont malheureusement peu efficaces et on ne les utilise que si l'on ne peut pas expliciter la décohérence sous forme analytique. Le problème est que dans certain cas, les méthodes de simulations sont incontournables.

La méthode de Monte Carlo

Le problème de la simulation se pose de la façon suivante : on se donne une suite de variables aléatoires suivant une certaine loi $\mu(x)$ et on cherche à réaliser sur un ordinateur une suite de tirages $X_1, \dots, X_n, \dots$ à priori infinie telle que les X_n suivent la loi $\mu(x)$ et que la suite $(X_n)_{n>0}$ soit une suite de variables aléatoires indépendantes.

Ainsi, si on sait simuler le poids Q de chacune des variables (de loi de probabilité $\mu(x)$), on peut montrer que l'on peut simuler un comportement par moyennage de cette loi de probabilité.

Simulation de variables aléatoires

Les lois que nous avons utilisées pour notre modélisation sont essentiellement des lois gaussiennes et exponentielles.

Simulation de variables gaussiennes

Une méthode classique (méthode de Box-Muller) pour simuler les variables aléatoires gaussiennes repose sur le fait que si (U_1, U_2) sont des variables aléatoires uniformes sur $[0,1]$ indépendantes, alors :

$$\sqrt{-2 \log(U_1)} \cos(2\pi U_2) \quad (3.54)$$

suit une loi gaussienne centrée et réduite.

Pour simuler des gaussiennes de moyenne m et de variance σ , il suffit de poser $X = m + \sigma g$, où g est une gaussienne centrée réduite.

Simulation d'une loi exponentielle

On peut simuler une variable aléatoire X suivant une loi exponentielle en constatant que si U suit une loi uniforme sur $[0,1]$,

$$\frac{\log(U)}{\mu} \quad (3.55)$$

suit une loi exponentielle de paramètre μ .

Simulation des équations différentielles stochastiques (EDS)

Il existe de nombreuses méthodes, certaines très sophistiquées, pour simuler la solution d'une équation différentielle stochastique : dans notre cas, nous allons utiliser le schéma d'Euler qui est une méthode simple d'approximation d'une équation différentielle par discrétisation. Cette discrétisation se fait en remplaçant les termes différentiels par des différences : la relation obtenue permet d'établir une relation de

réurrence pour le calcul pas à pas des valeurs prises par le processus stochastique au cours du temps.

Application aux équations de Bloch Optique

Formulation du problème

A partir de l'équation de Bloch Optique

$$i\hbar\dot{\sigma} = [H, \sigma] + \sigma_{relax} \quad (3.56)$$

on pose en prenant les notations de la référence[19] :

$$w = \frac{1}{2}(\sigma_{bb} - \sigma_{aa}) \quad (3.57)$$

$$v = \frac{1}{2i}(\sigma_{ab} - \sigma_{ba}) \quad (3.58)$$

$$u = \frac{1}{2}(\sigma_{ab} + \sigma_{ba}) \quad (3.59)$$

on obtient dans la cadre de l'approximation du champ tournant :

$$\dot{w} = \Omega_1 v - \Gamma w - \frac{\Gamma}{2} \quad (3.60)$$

$$\dot{v} = -\delta_L(t)u - \Omega_1 w - \frac{\Gamma}{2} \quad (3.61)$$

$$\dot{u} = \delta_L(t)v - \frac{\Gamma}{2}u \quad (3.62)$$

où $\delta_L(t)$ représente la variable aléatoire.

Description de la méthode

Pour effectuer nos simulations, il nous faut deux générateurs de nombres aléatoires : un simulant la distribution du décalage en énergie subi par la paire électron-trou de la boîte et un autre simulant les temps auxquels s'effectue les changements.

Ainsi, à chaque pas de discrétisation, on effectue un tirage pour savoir si il y a changement ou pas (la probabilité conditionnelle de changement augmentant au cours du temps t en $1 - e^{-t/\tau}$), puis s'il y a changement, on effectue un tirage pour connaître la valeur du décalage subi par la paire puis on recommence le schéma précédent. A chaque pas d'évolution, au lieu d'utiliser un calcul de type Euler, nous avons utilisé une méthode de Runge-Kutta à l'ordre 4[40] pour affiner le calcul.

On effectue ce genre de calculs plusieurs fois puis on moyenne sur tous les tirages pour en déduire un comportement de l'évolution en temps des cohérences. A partir de cette évolution, on peut en déduire le spectre par une transformée de Fourier ou dans notre cas, par une régression non-linéaire (en supposant que ce spectre est une superposition de plusieurs lorentziennes).

Résultats

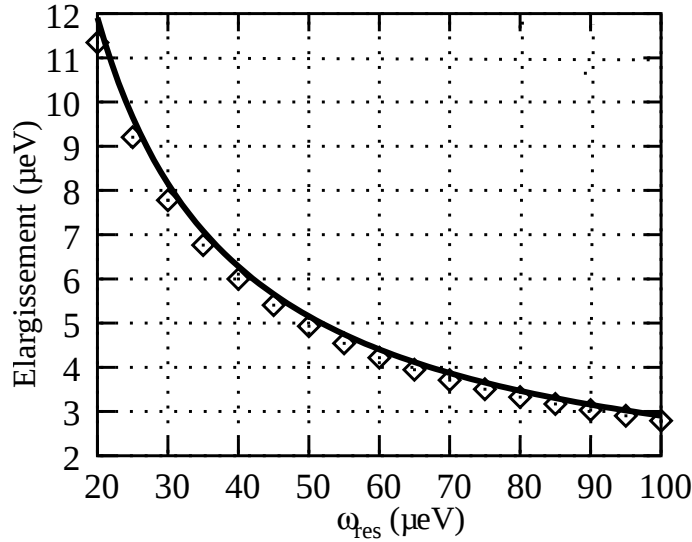


FIG. 3.12 – Comparaison de l'élargissement théorique (en trait plein) et de la simulation de l'EDS (en point) fait sur 1000 tirages pour le cas 1 piège ($\hbar\Delta = 30 \mu eV$)

Les résultats obtenus par les simulations sont conformes aux résultats et discussions précédentes (figure 3.12 page suivante) : adéquation avec les résultats analytiques des cas d'étude 'simplifiés', observation du *rétrécissement par le mouvement* dans tous les cas lorsque l'environnement fluctue rapidement.

Remarques

Ce schéma est bien adapté à notre cas mais en général il ne donne pas de résultats précis : en effet, la discrétisation brutale que nous avons effectué fait que l'erreur sur le différentiel de la variable stochastique est répercutée à chaque pas de temps si bien qu'on obtient une erreur non négligeable sur cette variable au fur et à mesure des approximations.

Par exemple, dans le cas de l'étude du mouvement brownien, l'erreur est de l'ordre du pas de discrétisation[41].

3.5.3 Detection et situation expérimentale

Dans cette section, nous considérons qualitativement l'évolution du spectre de PL dans le cas le plus général, avec un nombre arbitraire de pièges (indiqué par n) en fonction des différents temps impliqués dans le processus.

On notera p_m la probabilité de trouver le réservoir dans la configuration m ($m \in [1, 2^n]$)⁵ et τ_0 le temps moyen de changement de configuration

⁵la somme de n variables indépendantes prenant les valeurs 0 et $E_n \in R$ avec $|E_n|_{n \in N}$ différents 2 à 2 permet d'obtenir 2^n configurations différentes

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{1}{2} \sum_n \left(\frac{1}{\tau_{n,\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{n,\downarrow}} \right) \quad (3.63)$$

Si $1/\tau_{m \rightarrow n}$ représente le taux de changement de la configuration m vers la configuration n.

$$p_m = \frac{\sum_{n \neq m} \frac{1}{\tau_{m \rightarrow n}}}{\frac{1}{\tau_0}} \quad (3.64)$$

où

$$\frac{1}{\tau_0} = \sum_{m,n, m \neq n} \frac{1}{\tau_{m \rightarrow n}} \quad (3.65)$$

Ce temps moyen diminue considérablement avec le nombre de configurations en jeu. Les configurations m les plus instables ($\tau_{m \rightarrow n}$ petits) participent essentiellement à τ_0 .

Cas de changements rapides

Au cours des discussions précédentes, nous nous sommes intéressé au cas où les temps des changements $\tau_{n,\uparrow}, \tau_{n,\downarrow}$ ($= \tau_{\uparrow}, \tau_{\downarrow}$ dans le modèle simple étudié au début de ce chapitre, $n = 1$) étaient plus petits que le temps de recombinaison radiatif de l'état fondamental τ_{rad} et que le temps de mesure du photodétecteur τ_{mes} de telle sorte que plusieurs changements de la configuration électrostatique sont intervenus au cours de l'émission.

Dans ce cas, la forme du spectre est dépendante de la relation entre le décalage en énergie et les temps de changement impliqués dans le processus, il faut alors évaluer la valeur de

$$\int \Delta \omega dt \approx (\overline{\Delta \omega^2})^{1/2} \tau_0$$

qui représente l'accumulation de phase moyenne entre deux changements.

On peut alors distinguer plusieurs cas :

– (i). Cas où $(\overline{\Delta \omega^2})^{1/2} \tau_0 \ll 1$, alors

$$I(\omega) = \mathcal{L}_\Gamma[\omega - \langle \omega \rangle] \quad (3.66)$$

où $\mathcal{L}_\Gamma[\omega - \omega_0]$ est une lorentzienne de largeur Γ centrée autour de $\omega = \omega_0$

$$\Gamma \approx \Gamma^{rad} + \overline{\Delta \omega^2} \tau_0 \quad (3.67)$$

et

$$\langle \omega \rangle = \sum_m p_m \omega_m \quad (3.68)$$

est l'énergie moyenne associée à l'ensemble des configurations.

Le résultat des fluctuations fréquentes du réservoir est de créer un 'environnement moyen' dans lequel la paire va se recombinaison (dans une échelle de temps plus courte) : la largeur Γ peut être sensiblement plus grande que la valeur radiative intrinsèque (dans le même environnement statique).

- (ii). Dans le cas où $(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2}\tau_0 \gg 1$ l'accumulation de phase est importante, on observe alors plusieurs pics dont les centres sont décalés par rapport au cas où les temps seraient beaucoup plus long.
- (iii). Pour le cas intermédiaire des deux situations discutées précédemment, le spectre évolue de la situation de pics séparés (ii) à celle à un seul pic (i) de façon continue lorsque l'accumulation de phase diminue.

Cas de changements lents

Si $\tau_{rad} < \tau_{n,\sigma} < \tau_{mes}$, nous pouvons observer plusieurs pics fins (jusqu'à 2^n) avec des intensités dépendant des probabilités p_m . Dans ce cas, le spectre de photoluminescence $I(\omega)$ est donné par :

$$I(\omega) \approx \langle \mathcal{L}_{\Gamma rad}[w] \rangle = \sum_{m=1}^{2^n} p_m \mathcal{L}_{\Gamma rad}[\omega - \omega_m] \quad (3.69)$$

Cas de changements extrêmement lents

Si les temps de changements sont plus long que le temps de détection ($\tau_{mes} \ll \tau_{n,\sigma}$), le spectre de luminescence évolue dans le temps en fonction de la configuration électrostatique à l'instant considéré.

$$I(\omega) = \mathcal{L}_{\Gamma rad}[\omega - \omega_0(t)] \quad (3.70)$$

où $\hbar\omega_0(t)$ est l'énergie de transition de la boîte à l'instant t fonction de l'environnement électrostatique : c'est le régime de dérive spectrale (*spectral wandering*).

3.5.4 Résultats expérimentaux

L'élargissement des spectres sous fortes puissances d'excitation a été attribué[26–28, 43] aux porteurs de charge qui peuvent se piéger sur des défauts au voisinage de la boîte et vont créer des microchamp fluctuant dans le temps.

L'analyse des spectres de la référence[43] (voir figure 3.13 page ci-contre) montre que lorsque la puissance d'excitation augmente, le spectre exhibe des fluctuations beaucoup plus importantes : *pendant l'acquisition, les différentes positions énergétiques de la raie homogène induisent une augmentation de la largeur à mi-hauteur effectivement mesurée. La distribution des largeurs de raie mesurées reflète alors les propriétés inhomogènes du milieu environnant la boîte*[43].

On peut attribuer la largeur de la raie ainsi que les sauts observés (plus fréquents avec une puissance d'excitation croissante) à deux mécanismes faisant intervenir les fluctuations du milieu environnant :

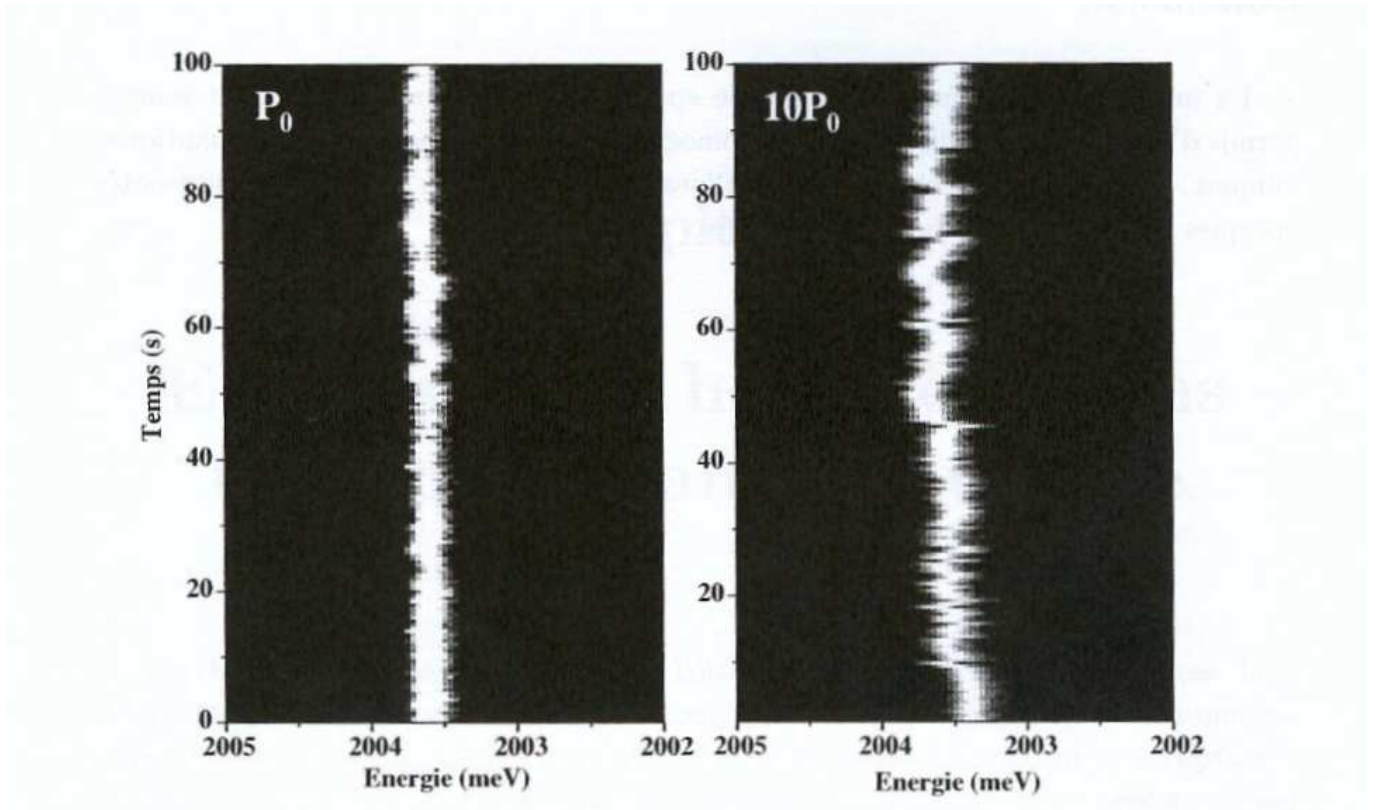


FIG. 3.13 – *Evolution temporelle de la position en énergie de l'émission d'une boîte quantique (CdTe/ZnTe) pour deux puissances d'excitation différentes P_0 et $10P_0$ ($P_0 \approx 100 \text{ W.cm}^{-2}$). Chaque graphe consiste en une série de 200 spectres enregistrés successivement avec un temps d'intégration de 0.5 s[43]*

- (i). les sauts dépendants de la puissance d'excitation sont attribués à des mécanismes lents (temps de changement $> \tau_{rad}$, où τ_{rad} représente le temps de vie radiatif de la paire électron-trou de la boîte) dont l'effet principal est de décaler l'énergie de recombinaison sans contribuer à l'élargissement réel de la transition,
- (ii). la largeur (appelée *homogène* dans la référence[43]) est quasiment indépendante de la puissance d'excitation. Nous pouvons alors attribuer cet effet à des fluctuations de l'environnement beaucoup plus rapides que ceux cités précédemment (beaucoup plus petits que le temps de vie radiatif τ_{rad}) comme nous allons le voir par la suite.

Des mesures récentes (I. Favéro *et al.*) de largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation à énergie fixé viennent confirmer ce fait : la largeur mesurée augmente avec la puissance d'excitation jusqu'à atteindre une valeur seuil de l'ordre de $35 \mu eV$.

Modélisation dans le cas (ii)

Reprenons le modèle du paragraphe (3.5.1). Supposons que n perturbateurs interviennent dans le processus d'élargissement, et que le temps d'un cycle de création-recombinaison est limité par le temps de vie radiatif τ_{rad} d'un exciton (sous excitation continue à forte puissance, la régénération de l'exciton est immédiate).

Ces n excitons contribuent à l'élargissement de manière indépendante : on effectue la somme de n variables aléatoires indépendantes de temps caractéristique τ_{rad} , le temps de changement de configuration τ_0 est alors donné par

$$\tau_0 = \frac{\tau_{rad}}{n} \quad (3.71)$$

Soit ω_0 le décalage en énergie moyen attribué à un exciton sur la paire électron-trou de la boîte. Le paramètre de dispersion en énergie de la somme des n variables est alors donné par l'équation (3.46) :

$$(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2} = \omega_0(\overline{\Delta n^2})^{1/2} = \omega_0\sqrt{2n}$$

Evaluons la valeur de l'équation (3.51) qui dans notre cas donne :

$$(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2}\tau_0 = \frac{\omega_0\sqrt{2n}\tau_{rad}}{n} = \frac{\sqrt{2}\omega_0\tau_{rad}}{\sqrt{n}} \quad (3.72)$$

On voit alors que pour des valeurs suffisamment grande de n , on se trouve dans le cas des faible perturbations ($(\overline{\Delta\omega^2})^{1/2}\tau_0 \ll 1$).

Le spectre a alors un contour lorentzien et son élargissement (FWHM) est donné par (voir équation (3.52) *rétrécissement par le mouvement*) :

$$\hbar(\overline{\Delta\omega^2})\tau_0 = \hbar(\omega_0\sqrt{2n})^2\frac{\tau_{rad}}{n} = 2\hbar\omega_0^2\tau_{rad} \quad (3.73)$$

Le nombre croissant de porteurs de charge participant à l'élargissement est compenser par le phénomène du *rétrécissement par le mouvement*.

En supposant que le temps de vie radiatif τ_{rad} est de l'ordre de 200 ps ($\hbar/\tau_{rad} \approx 3 \mu eV$) et que le décalage moyen induit par la présence d'un exciton sur la paire électron-trou de la boîte est de l'ordre de $7 \mu eV$ (voir chapitre 2), l'élargissement donné par une excitation laser haut en énergie est alors de l'ordre de $33 \mu eV$.

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la réponse optique des boîtes sous l'influence d'un environnement électrodynamique.

Un modèle simple nous a permis d'obtenir analytiquement les expressions de l'élargissement des spectres de PL, PLE sous l'influence d'un environnement statique ou dynamique, pour différentes puissances d'excitation (régime linéaire et non-linéaire) et pour différentes énergies d'excitation (en ou hors résonance).

Ensuite, nous avons déterminé que le rôle des changements de l'environnement est principalement de deux types :

- pour des fréquences de fluctuation f_l faibles ($f_l < 1/\tau_{rad}$ où τ_{rad} représente le temps de vie radiatif de la paire électron-trou de la boîte), les porteurs de charge sont vus comme des centres statiques par la paire dont l'énergie de transition ne fait que subir un décalage sans induire un quelconque élargissement,
- pour des fréquences de fluctuation f_c très rapides devant le décalage en énergie moyen Δ subit par la paire ($f_c \gg \Delta$), on se trouve dans le régime du *rétrécissement par le mouvement* : les fluctuations de l'énergie de transition sont alors à l'origine d'un élargissement homogène.

Chapitre 4

Structure fine

Afin de manipuler la charge et le spin des porteurs capturés dans la boîte, il est nécessaire d'étudier les interactions de Coulomb entre électrons et trous. En particulier, pour les applications des boîtes individuelles comme source de photons uniques, l'interaction d'échange entre électrons et trous est cruciale parce qu'elle détermine la polarisation et l'intrication des photons émis (voir paragraphe 4.5.1).

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à l'influence de l'anisotropie de forme et de petits champs pouvant fluctuer dans l'espace et le temps et ensuite, dans le cadre d'une application pratique, nous allons nous intéresser à la mise en place d'un champ contrôlé de l'extérieur en vue d'annuler le splitting d'échange.

Dans ce chapitre (sauf mention contraire), la boîte utilisée est une boîte de rayon moyen $R_m = 100 \text{ \AA}$, de hauteur $h = 25 \text{ \AA}$, de potentiel de confinement de $\Delta E_c = 450 \text{ meV}$ pour les électrons et de $\Delta E_v = 200 \text{ meV}$ pour les trous. La valeur du gap est alors $E_g = 870 \text{ meV}$. Ces valeurs nous donnent une énergie de transition optique de l'ordre de 1.2 eV comme dans beaucoup d'expériences

4.1 Interaction d'échange dans une boîte quantique

4.1.1 Origine de l'interaction d'échange

Une excitation optique peut faire passer un électron de la bande de valence vers la bande de conduction et laisse ainsi une place vide dans la bande de valence.

Si on prend comme zéro d'énergie celui de la configuration où la bande de valence est pleine et celle de conduction est vide, les éléments de la matrice $\mathcal{H}$ du problème sous-jacent à N corps s'écrivent[47] :

$$\langle \Theta_{vc} | \mathcal{H} | \Theta_{v'c'} \rangle = (\epsilon_c - \epsilon_v) \delta_{v,v'} \delta_{c,c'} - \mathcal{K}_{vc,v'c'} + \mathcal{J}_{vc,v'c'} \quad (4.1)$$

où Θ_{vc} représente le déterminant de Slater obtenu à partir de l'état fondamental Θ_0 (déterminant d'une matrice dont les colonnes sont composés d'états Φ_v dans la bande de valence) en excitant un électron de l'état à une particule $\Phi_v(\vec{r})$ de la bande de valence vers l'état $\Phi_c(\vec{r})$ de la bande de conduction.

Dans le massif, les fonctions d'onde $\Phi_\alpha(\vec{r})$ sont des spineurs repérés par le vecteur d'onde $\vec{k}$, $\Phi_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$ ($= \Phi_{\alpha,\vec{k}\uparrow}(\vec{r}), \Phi_{\alpha,\vec{k}\downarrow}(\vec{r})$) où les parties orbitales sont des fonctions de Bloch :

$$\Phi_{\alpha,\vec{k},\sigma}(\vec{r}) = u_{\alpha,\vec{k},\sigma}(\vec{r}) \frac{\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})}{\sqrt{V}}$$

Il y a alors deux contributions à l'interaction coulombienne : l'*interaction directe* $\mathcal{K}$ qui couple deux paires électron-trou de même configuration de spin, et une *interaction d'échange* $\mathcal{J}$ qui peut coupler deux paires électron-trou de configuration de spin différente (voir la figure 4.2 page 92).

$$\mathcal{K}_{vc,v'c'} = \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \frac{\Phi_{v'}^*(\vec{r}_1) \Phi_c^*(\vec{r}_2) \Phi_v(\vec{r}_1) \Phi_{c'}(\vec{r}_2)}{\kappa |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (4.2)$$

$$\mathcal{J}_{vc,v'c'} = \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \frac{\Phi_{v'}^*(\vec{r}_1) \Phi_c^*(\vec{r}_2) \Phi_{c'}(\vec{r}_1) \Phi_v(\vec{r}_2)}{\kappa |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (4.3)$$

On peut remarquer que les deux intégrales ont à la fois des contributions diagonales ($v = v', c = c'$) et non diagonales.

On remarque aussi que l'intégrale d'échange fait apparaître les recouvrements des fonctions d'onde $\Phi_v^*(\vec{r}_i)$ et $\Phi_c(\vec{r}_i)$: ceci suggère que dans les boîtes quantiques, le terme d'échange peut devenir important à cause du confinement fort imposé aux porteurs.

4.1.2 Représentation de l'hamiltonien à deux corps

Les solutions de l'équation aux valeurs propres associée à (4.1) nous donnent les excitations électroniques les plus basses du semiconducteur intrinsèque (énergie $\approx$ bande interdite).

Les éléments de matrice en (4.1)-(4.3) dépendent uniquement des états de conduction occupés et de l'état de valence vide de Θ_{vc} . Ce fait est à l'origine de l'image excitonique usuelle, où les états excités du semiconducteur sont ceux résultant de l'interaction effective entre deux particules, un électron dans la bande de conduction et un trou dans la bande de valence.

Dans l'espace réel, la forme générale de l'hamiltonien effectif à deux corps est[44] :

$$\mathcal{H}_{e-h} = H_e(r_e) + H_h(r_h) + \mathcal{H}_{coul}(r_e, r_h) + \mathcal{H}_{ech}(r_e, r_h) \quad (4.4)$$

où $H_{e,h}$ est l'hamiltonien à une particule (dont les états propres sont les spineurs $\Phi_\alpha(\vec{r})$), $\mathcal{H}_{coul}$ l'interaction coulombienne directe et $\mathcal{H}_{ech}$ celle coulombienne d'échange.

On note usuellement $\mathcal{H}_{coul}$ l'interaction de Coulomb et $\mathcal{H}_{ech}$ l'interaction d'échange (même si ces deux interactions sont d'origine coulombienne)

4.2 Splitting d'échange

4.2.1 Interaction d'échange courte portée et longue portée

La description théorique du terme d'échange électron-trou a été développée par Pikus et Bir[48] : l'intégrale d'échange peut être séparée en deux termes, l'interaction d'échange courte portée et l'interaction d'échange longue portée. Dans l'espace réel, l'interaction d'échange courte portée concerne plutôt la partie périodique des fonctions de Bloch (elle dépend de la probabilité de trouver l'électron et le trou dans la même cellule élémentaire) et l'interaction longue portée agit sur une plus grande échelle, elle est dominée par le recouvrement des fonctions enveloppes.

Dans l'espace réciproque, l'hamiltonien décrivant l'interaction d'échange est décomposé en une partie analytique (que l'on associe à l'interaction d'échange courte portée) et en une partie non-analytique (que l'on associe à l'interaction d'échange longue portée). En fait, il y a une correspondance étroite entre ces deux dénominations mais pas une stricte identité.

4.2.2 Traitement du problème

Pour décrire le problème, on part de l'hamiltonien des deux particules considérées comme indépendantes (H_e et H_h) puis on traite les termes direct $\mathcal{H}_{coul}$ et d'échange $\mathcal{H}_{ech}$ en perturbation.

Eléments de la base de travail (voir figure 1.14 page 30)

On se place dans le sous-espace (spinoriel) des paires électron-trou lourds (voir figure 1.14 page 30)

$$|\uparrow, \frac{3}{2}\rangle, |\uparrow, -\frac{3}{2}\rangle, |\downarrow, \frac{3}{2}\rangle, |\downarrow, -\frac{3}{2}\rangle$$

puisque l'on ne tient pas compte des trous légers (de spin $\frac{1}{2}$).

On peut nommer cette base d'une autre façon, en fonction des polarisations circulaires des ondes issues de la recombinaison électron-trou des états optiquement actifs :

$$|\uparrow, -\frac{3}{2}\rangle = |-1\rangle \text{ et } |\downarrow, \frac{3}{2}\rangle = |+1\rangle$$

et par extension pour les états non-optiquement actifs appelés états noirs car ils ne sont pas couplés à la lumière (le moment cinétique $J_z = \pm 2$ ne peut être cédé à un photon)

$$|\downarrow, -\frac{3}{2}\rangle = |-2\rangle \text{ et } |\uparrow, \frac{3}{2}\rangle = |+2\rangle$$

Hamiltonien phénoménologique

Phénoménologiquement, la forme générale de l'hamiltonien de spin pour l'interaction d'échange d'un exciton formé d'un trou de spin J_h et d'un électron de spin J_e est donnée par[49] :

$$\mathcal{H}_{ech} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} J_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 J_{e,i}) \quad (4.6)$$

Dans la base $(|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle)$, la représentation matricielle est la suivante :

$$\mathcal{H}_{ech} = \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

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

La rupture de symétrie de la boîte se trouve dans les termes b_x et b_y qui sont différents dès que les deux directions ne sont plus équivalentes.

Terme courte portée

Le terme courte portée a pour effet principal de séparer les états noirs des états brillants par une énergie $2\delta_0$ (voir figure 4.1 page ci-contre et référence[50]).

Les états noirs sont toujours splittés (de $2\delta_2$) tandis que les états brillants sont splittés par l'interaction d'échange longue portée (de $2\delta_1$) seulement lorsque la boîte est asymétrique.

Terme longue portée

Pour le calcul du terme longue portée, on va se placer dans la sous-base

$$|+1\rangle, |-1\rangle$$

des états brillants (les états noirs sont rejetés loin de ces états par le terme δ_0 de l'interaction courte portée).

Le terme direct a un effet purement diagonal et uniforme sur cette base : il déplace l'énergie de l'excitation fondamentale et affecte très peu la structure des fonctions d'onde (en particulier, il ne crée pas de levée de dégénérescence et de couplage entre les deux états). Par contre, le terme d'interaction d'échange longue portée va lever la dégénérescence (terme non-diagonal) et mélanger les deux états (en plus du terme diagonal qui va simplement déplacer l'énergie d'excitation).

4.2.3 Calcul du splitting d'échange longue portée

Origine physique du terme d'échange longue portée : prise en compte du terme $\vec{k} \cdot \vec{p}$

Plaçons nous dans la base réduite (voir paragraphe 4.2.2)

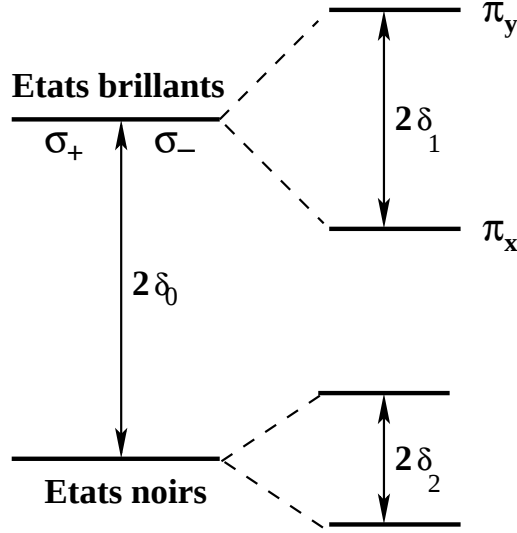


FIG. 4.1 – Structure fine de l'exciton lourd

$$|iS \uparrow \rangle, |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle, |iS \downarrow \rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$$

pour déterminer la fonction de Bloch au voisinage du centre de zone de Brillouin.

La matrice $\vec{k}\vec{p}$ pour les états massifs à $\vec{k} \neq \vec{0}$ s'écrit alors :

$$\mathcal{H}_{\vec{k}\vec{p}} = \begin{pmatrix} \mathcal{H} & 0 \\ 0 & \mathcal{H} \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

où $\mathcal{H}$ est la matrice 2×2

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} & ip\hbar k_+ \\ ip\hbar k_- & -E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

un calcul en perturbation nous permet alors d'écrire :

$$u_c(\vec{k}) \approx u_c(0) - i \frac{\hbar}{m_0} \frac{\vec{k}\vec{p}}{E_g} u_v(0) \quad (4.10)$$

$$u_v(\vec{k}) \approx u_v(0) + i \frac{\hbar}{m_0} \frac{\vec{k}\vec{p}}{E_g} u_c(0) \quad (4.11)$$

où E_g représente l'énergie de gap du matériaux d'InAs (contraint).

Il est important de souligner ce résultat car l'évaluation du gap est difficile à effectuer car déterminé à partir de mesure indirecte.

Un calcul de l'interaction d'échange $\langle \Phi_c(\vec{r}_1) \Phi_{v'}(\vec{r}_2) | V_{coul} | \Phi_v(\vec{r}_1) \Phi_{c'}(\vec{r}_2) \rangle$ (voir Annexe C.) nous permet d'obtenir le terme d'échange longue portée (LR¹)[48] :

¹Notation anglaise : Long Range

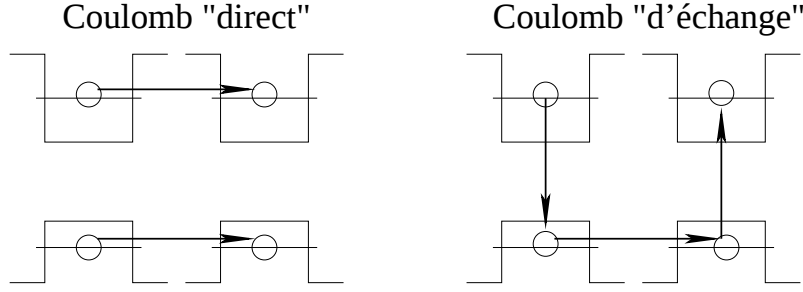


FIG. 4.2 – Représentation schématique de l'interaction d'échange qui peut être vue comme la recombinaison et la régénération virtuelle d'un exciton (voir annexe C. et la référence[48])

$$\begin{aligned} \langle \Psi_X(\vec{r}_e, \vec{r}_h) | \mathcal{H}_{ech}^{LR} | \Psi_X(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \rangle \\ \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \int d\vec{q} V_q (\vec{p}_{c_0 v_0} \cdot \vec{q}) (\vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot \vec{q}) \left| \int d\vec{r} (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}) \Psi_{n_h}(\vec{r})) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \end{aligned} \quad (4.12)$$

où

$$V_q = -\frac{4\pi}{(2\pi)^3} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r q^2} \quad (4.13)$$

est déterminé par une transformée de Fourier du potentiel coulombien,

$$\Psi_X(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \Psi_{n_e}^*(\vec{r}_e) \Psi_{n_h}(\vec{r}_h) \quad (4.14)$$

est l'exciton formé à partir de la paire électron-trou de la boîte,

$$\vec{p}_{c_0 v_0} = \langle u_v(0) | \vec{p} | u_c(0) \rangle \quad (4.15)$$

est l'élément de matrice de l'opérateur impulsion entre la bande de conduction et la bande de valence.

Eléments de matrice de l'hamiltonien L.R.

Dans la base réduite des états de spin

$$| \downarrow, \frac{3}{2} \rangle = | +1 \rangle, | \uparrow, -\frac{3}{2} \rangle = | -1 \rangle$$

cet hamiltonien apporte une correction diagonale ϵ_d^{ech} telle que :

$$\epsilon_d^{ech} = \frac{\hbar^2}{m_o^2 E_g^2} \int d\vec{q} \frac{p^2}{2} (q_x^2 + q_y^2) V_q \left| \int d\vec{r} (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}) \Psi_{n_h}(\vec{r})) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (4.16)$$

et deux termes non diagonaux, conjugués l'un de l'autre :

$$\frac{\hbar^2}{m_o^2 E_g^2} \int d\vec{q} \frac{p^2}{2} (q_x + i.q_y)^2 V_q \left| \int d\vec{r} (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}) \Psi_{n_h}(\vec{r})) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (4.17)$$

soit écrit dans la base $|+1\rangle, |-1\rangle$:

$$\langle \Psi_X | \mathcal{H}_{ech}^{LR} | \Psi_X \rangle = \oint d\vec{q} q_{\perp}^2 \begin{pmatrix} 1 & e^{i.2\theta_q} \\ e^{-i.2\theta_q} & 1 \end{pmatrix} \quad (4.18)$$

où $\vec{q}_{\perp}$ le vecteur d'onde dans le plan, θ_q l'angle de ce vecteur d'onde avec l'axe de référence et $d\vec{q} = q_{\perp} dq_{\perp} d\theta_q dq_z$

et où

$$\oint d\vec{q} = \frac{\hbar^2}{m_o^2 E_g^2} \int d\vec{q} \frac{p^2}{2} V_{\vec{q}} \left| \int d\vec{r} \Psi(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (4.19)$$

Influence du splitting d'échange L.R. sur les propriétés optiques des boîtes

L'hamiltonien d'échange longue portée s'écrit dans la base $|+1\rangle, |-1\rangle$:

$$\langle \Psi_X | \mathcal{H}_{ech}^{LR} | \Psi_X \rangle = \begin{pmatrix} \varepsilon_d^{ech} & \varepsilon_{nd}^{ech} e^{+2i\theta} \\ \varepsilon_{nd}^{ech} e^{-2i\theta} & \varepsilon_d^{ech} \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

où $(\varepsilon_d^{ech}, \varepsilon_{nd}^{ech}) \in \mathbb{R}^2$.

Les états propres de cet hamiltonien sont :

$$\frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}} (e^{-i\theta} | +1 \rangle + e^{i\theta} | -1 \rangle) \quad (4.21)$$

associé à la valeur propre $\varepsilon_d^{ech} + \varepsilon_{nd}^{ech}$. Cet état propre correspond à une polarisation linéaire suivant l'axe dirigé par θ .

et

$$\frac{e^{1\theta}}{\sqrt{2}} (e^{-i\theta} | +1 \rangle - e^{i\theta} | -1 \rangle) \quad (4.22)$$

associé à la valeur propre $\varepsilon_d^{ech} - \varepsilon_{nd}^{ech}$. Cet état propre correspond à une polarisation linéaire suivant l'axe perpendiculaire à l'axe précédent.

Les conséquences optiques de l'existence de l'interaction d'échange sont résumées figure 4.3 page suivante : les photons émis ont une polarisation linéaire suivant deux axes perpendiculaires séparés par une énergie $2\varepsilon_{nd}^{ech}$

4.3 Influence d'une anisotropie de forme sur le splitting d'échange de la transition interbande fondamentale

Ces dernières années, un nombre important d'expériences ont permis d'observer la structure fine des transitions interbandes d'échantillons de très bonnes qualités.

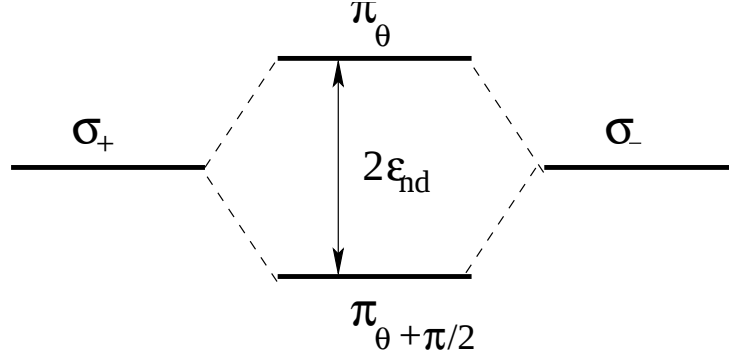


FIG. 4.3 – Conséquences du splitting d'échange sur les propriétés optiques de la transition fondamentale dans le cas où $\varepsilon_{nd}^{ech} > 0$. Ici, π_θ (resp. $\pi_{\theta+\pi/2}$) représente la polarisation linéaire suivant l'axe effectuant un angle θ avec un axe de référence (axe $[1\bar{1}0]$ par exemple) (resp. suivant sa perpendiculaire)

Ces expériences montrent en particulier, l'existence de deux transitions linéairement polarisées suivant les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ comme dans les références[45, 46]. Ces résultats ont été attribués à une anisotropie géométrique du potentiel de confinement de la boîte[51–53].

En fait, dès que le potentiel ressenti par les porteurs de la boîte n'est pas symétrique dans le plan, l'interaction d'échange lève la double dégénérescence du niveau radiatif de l'exciton 'lourd' pour donner deux transitions polarisées linéairement dans deux directions orthogonales (suivant les axes principaux de l'anisotropie)[54], ces deux niveaux étant séparés par l'énergie d'échange : il est alors communément admis que la valeur du splitting d'échange d'une boîte nous renseigne sur son degré d'anisotropie.

On étudiera tout d'abord le rôle de l'anisotropie de forme sur le splitting d'échange dans un cadre perturbatif (paragraphe 4.3.1) pour les états de paire électron-trou, ensuite à l'aide d'une fonction d'onde variationnelle pour l'état fondamental (paragraphe 4.3.2).

4.3.1 Calcul perturbatif

Base de travail

Dans tout ce paragraphe, nous nous plaçons dans la base des 25 fonctions enveloppes des paires électron-trou $|\Psi_{n_e} \Psi_{n_h}\rangle$ où Ψ_{n_e} et Ψ_{n_h} représentent respectivement les fonctions enveloppes S , P et D des états à une particule déterminées dans le chapitre 1 pour les électrons et pour les trous (leurs positions en énergie sont indiquées sur la figure 1.13 page 28 pour une boîte $R=100$ Å, $h=15$ Å, $\Delta E_c=697$ meV, $\Delta E_v = 288$ meV).

Nous allons calculer les différents éléments de matrice en tenant compte de l'anisotropie de forme de la boîte et du potentiel coulombien pour déterminer l'état

propre fondamental de la matrice hermitique ainsi obtenue et déterminer la valeur du splitting d'échange et l'angle de polarisation des photons émis.

Nous allons comparer systématiquement les résultats obtenus dans trois bases principales pour les états d'une paire électron-trou :

- (i) les 25 états issus des états S , P et D de l'électron et du trou, couplés par le potentiel coulombien (modèle 'excitonique' ; en trait plein)
- (ii) les 25 états de (i) en l'absence de couplage coulombien (modèle 'bande à bande' ; en tiret)
- (iii) les 9 états de (i) en négligeant les états de type D (base 'excitonique tronquée' ; en tiret-point)

Le deuxième cas nous permettra de quantifier le rôle du couplage de Coulomb, tandis que le dernier cas nous permettra de comprendre qualitativement (voir Annexe D.) certains résultats obtenus numériquement. D'autres bases également utilisées dans ce chapitre seront décrites au fur et à mesure.

Résultats

Splitting

Le splitting est fonction croissante de l'ellipticité (voir la figure 4.4 page suivante), ceci est une conséquence directe de l'augmentation du couplage d'échange avec l'asymétrie croissante des directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$: le caractère linéaire puis concave (à droite sur la figure 4.4 page suivante) de la fonction sont discutés plus loin à l'aide d'une base réduite.

La comparaison des courbes en trait plein (avec Coulomb) et en tiret (sans Coulomb) de la figure 4.4 page suivante, montre que le potentiel coulombien vient renforcer l'effet de l'interaction d'échange. En effet, dans la base (ii), la prise en compte de l'anisotropie seule couple l'état fondamental $|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle$ de la boîte ronde aux états de la collection A suivante :

$$A.\{|\Psi_{S_e} \Psi_{Dx_h}\rangle; |\Psi_{Dx_e} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{Dx_e} \Psi_{Dx_h}\rangle\}$$

Le potentiel coulombien ajoute des états dans la perturbation de $|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle$ en faisant intervenir les états de la collection I. (voir chapitre 1., paragraphe 1.2.6 et annexe A.). Parmi ces états se trouvent les états $|\Psi_{Px_e} \Psi_{Px_h}\rangle$ et $|\Psi_{Py_e} \Psi_{Py_h}\rangle$ qui sont directement affectés par l'anisotropie (voir discussion suivante sur l'interprétation dans une base réduite). Ils viennent donc renforcer l'effet des états de la collection A. sur le splitting d'échange.

La prise en compte des états S et P seuls (en tiret-point) sous-estime la valeur du splitting d'échange : cela implique que la contribution des états D est primordiale dans le calcul du splitting d'échange comme fonction de l'anisotropie (perturbation à symétrie D). Ce constat est en accord avec la discussion liée au choix de la fonction d'onde variationnelle (1.31) pour traiter l'effet de l'anisotropie sur l'état fondamental à une particule : le potentiel de confinement impose une forme 'elliptique' de la fonction d'onde qui dans le cas d'une faible ellipticité acquiert essentiellement une composante D (voir discussion paragraphe 1.2.6 sur le choix de la fonction d'essai (1.31)).

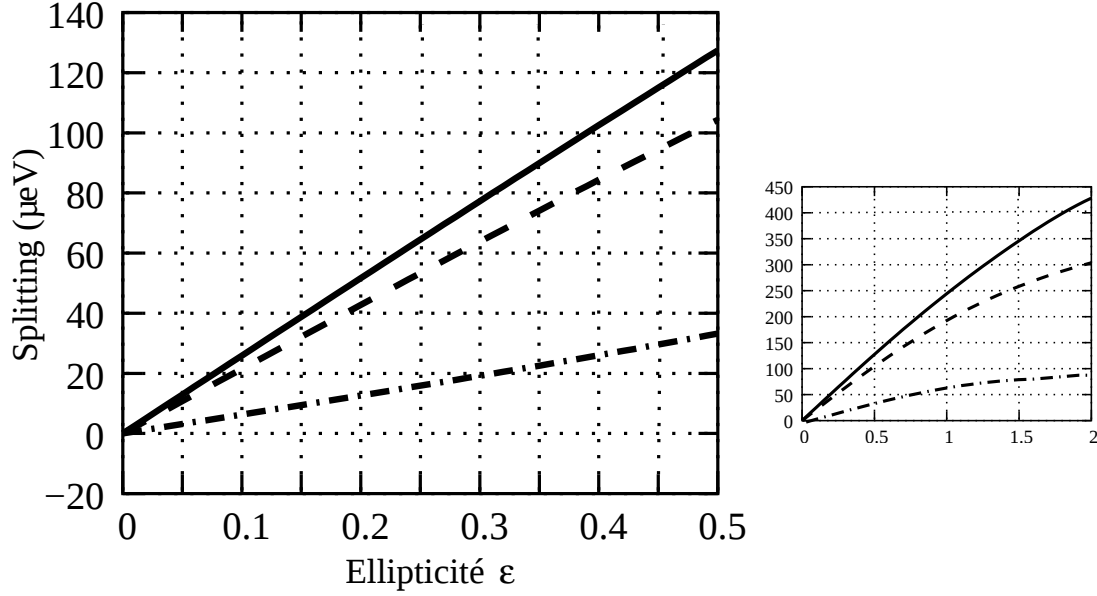


FIG. 4.4 – Evolution du splitting d'échange en fonction de l'ellipticité ϵ à $R_m = 100 \text{ \AA}$ fixé (3 courbes $\leftrightarrow$ 3 bases). A droite se trouvent les courbes tracées pour des valeurs plus grandes de l'ellipticité ($\epsilon \in [0; 2]$)

Polarisation

La lumière résultant de la prise en compte du terme d'interaction d'échange est alors polarisée suivant les axes principaux de l'anisotropie (polarisation π_x ; π_y).

Interprétation dans une base réduite[54]

Plaçons nous dans la base (iii) composées par les seuls états hybrides tenant compte des états S et P (en tiret-point sur la figure 4.4).

Notons $|\Psi_{fond}\rangle$ l'état fondamental combinaison linéaire des états de la base considérée.

En présence du potentiel de Coulomb seul, l'état fondamental mélange les états $\{|\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle\}$ issus de la collection I.

On a alors, dans le cas d'une boîte ronde :

$$|\Psi_{fond}\rangle = a|\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle + b(|\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle + |\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle) \quad (4.23)$$

puisque les rôles joués par $|\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle$ et $|\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle$ sont les mêmes.

Prenons en compte l'anisotropie qui va différencier les contributions des états P dans l'état fondamental :

$$|\Psi_{fond}\rangle = \alpha|\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle + \beta|\Psi_{P_{x_e}}\Psi_{P_{x_h}}\rangle + \gamma|\Psi_{P_{y_e}}\Psi_{P_{y_h}}\rangle \quad (4.24)$$

En effectuant le calcul de l'équation (4.17) pour le terme non-diagonal de l'interaction d'échange longue portée, on trouve (voir annexe D.) :

$$\epsilon_{nd}^{ech} \approx E_{sp}\epsilon - E_{pp}\epsilon^2 \quad (4.25)$$

où E_{sp} représente un terme d'énergie relatif aux états S et P et E_{pp} un terme relatif aux états P .

Dans les boîtes elliptiques où on ne prend en compte que les états S et P , le niveau fondamental présente donc un spin-splitting linéaire en ϵ pour $\epsilon \ll 1$: la structure fine de la transition fondamentale est associée au couplage indirect (via Coulomb) de l'état $|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle$ aux états $|\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle$ directement affectés par l'anisotropie.

4.3.2 Calcul variationnel

Dans les calculs présentés jusqu'ici, l'état fondamental a été développé dans une base d'états d'électrons et de trous d'une boîte ronde. L'anisotropie de forme a été prise en perturbation à l'ordre le plus bas. Il ressort des résultats précédents que la structure fine de la transition fondamentale est très sensible aux détails de la fonction d'onde $\Psi_{fond}(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ et que seules les boîtes très anisotropes sont susceptibles de présenter un couplage d'échange important. On considère dans la suite une approche variationnelle pour $\Psi_{fond}(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$. Cela nous permettra de mieux évaluer l'effet d'une forte anisotropie sur la structure fine de la transition optique.

Calcul du splitting d'échange

On rappelle l'équation (1.31) pour l'état fondamental à une particule :

$$\Psi_{fond}^{var}(x, y, z) = N.e^{-\frac{x^2}{2\beta_x^2}} e^{-\frac{y^2}{2\beta_y^2}} e^{-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}}$$

L'indépendance des deux directions x et y de cette fonction d'essai nous permet de pouvoir prendre en compte les étalements dans ces deux directions, et donc la rupture de symétrie de la fonction d'onde, ayant comme conséquence l'apparition d'un splitting d'échange.

La fonction d'onde de la paire sera approchée par

$$\Psi_{fond}^{var}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \Psi_{fond(e)}^{var}(\vec{r}_e) \Psi_{fond(h)}^{var}(\vec{r}_h) \quad (4.26)$$

Dans ce paragraphe on ne prendra donc pas en compte les modifications apportées par le couplage de Coulomb.

Un calcul du splitting d'échange sur cette fonction d'onde donne :

$$\epsilon_{nd}^{ech} \propto \int dq_{\perp} \left[q_{\perp}^2 e^{\frac{\sigma_z^2 q_{\perp}^2}{2}} (1 - \operatorname{erf}(\frac{\sigma_z q_{\perp}}{\sqrt{2}})) e^{-\frac{(\beta_x^2 + \beta_y^2) q_{\perp}^2}{4}} I_1(\frac{\beta_x^2 - \beta_y^2}{4} q_{\perp}^2) \right] \quad (4.27)$$

où I_1 représente la fonction de bessel I d'ordre 1[55] et erf la fonction erreur.

β_x , β_y et σ_z représentent les 'étalements moyens' où étalements 'composites' :

$$\frac{2}{\beta_x^2} = \frac{1}{\beta_{xe}^2} + \frac{1}{\beta_{xh}^2} \quad ; \quad \frac{2}{\beta_y^2} = \frac{1}{\beta_{ye}^2} + \frac{1}{\beta_{yh}^2} \quad ; \quad \frac{2}{\sigma_z^2} = \frac{1}{\sigma_{ze}^2} + \frac{1}{\sigma_{zh}^2} \quad (4.28)$$

suivant les direction x, y et z.

Evolution du splitting en fonction de l'ellipticité de la boîte

La figure 4.5 page suivante montre l'évolution du splitting d'échange en fonction de l'ellipticité. Pour des ellipticités petites, cette fonction est linéaire.

En effet, lorsque $\epsilon \ll 1$, les directions $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$ sont très peu différentes et le splitting d'échange est approximativement² proportionnel à :

$$\epsilon_{nd}^{ech} \propto \mathcal{I}(q_{\perp})(\beta_x^2 - \beta_y^2) \quad (4.29)$$

où $\mathcal{I}(q_{\perp})$ représente une intégrale sur $q_{\perp}$.

De plus, on a

$$\beta_x^2 - \beta_y^2 \propto \epsilon \quad (4.30)$$

comme montré sur la figure 4.6 page ci-contre.

Ce résultat peut être également obtenu si l'on considère que pour des ellipticités faibles :

$$\beta_x^2 - \beta_y^2 \propto a^2 - b^2 \quad (4.31)$$

et par définition de l'ellipticité :

$$\frac{a^2}{b^2} = 1 + \epsilon \quad ; \quad R_m^2 = ab \quad \Rightarrow \quad a^2 - b^2 \approx \epsilon R_m^2 \quad ; \quad \epsilon \ll 1 \quad (4.32)$$

pour un développement limité à l'ordre 1.

Tout comme au paragraphe 4.3.1, le splitting d'échange est une fonction linéaire de l'ellipticité puis sa valeur décroît par rapport à la droite tangente à l'origine.

Evolution du splitting en fonction du rayon moyen de la boîte

La figure 4.7 page 100 montre l'évolution du splitting d'échange en fonction du rayon moyen à ellipticité fixée. Cette courbe présente un maximum pour $R_m \approx 55 \text{ \AA}$. En dessous de cette valeur, on se trouve dans une situation matériau massif GaAs.

La courbe d'évolution du splitting d'échange en fonction de l'inverse du rayon (figure 4.8 page 101) exhibe une évolution en $1/R$ pour des boîtes variant de 80 à $\approx 150 \text{ \AA}$ (partie droite de la courbe) : cette évolution a été attribuée à un caractère monopôle-monopôle de l'interaction d'échange longue portée dans les boîtes quantiques[47]. Au delà de $150 \text{ \AA}$, l'évolution du splitting d'échange est en $1/R^3$ (interaction dipôle-dipôle) comme dans le massif : la boîte est effectivement grande et on se trouve dans le matériau massif InAs (les fonctions d'essai ne sont plus

² $I_1(x) \approx \frac{1}{2} x$ lorsque $|x| \ll 1$

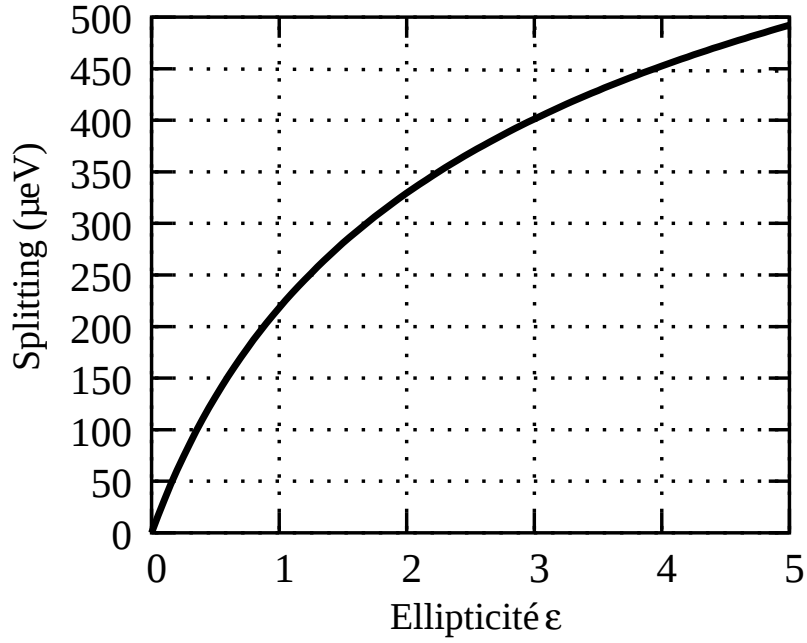


FIG. 4.5 – Evolution du splitting d'échange en fonction de l'ellipticité calcul variationnel, $R_m = 100 \text{ \AA}$

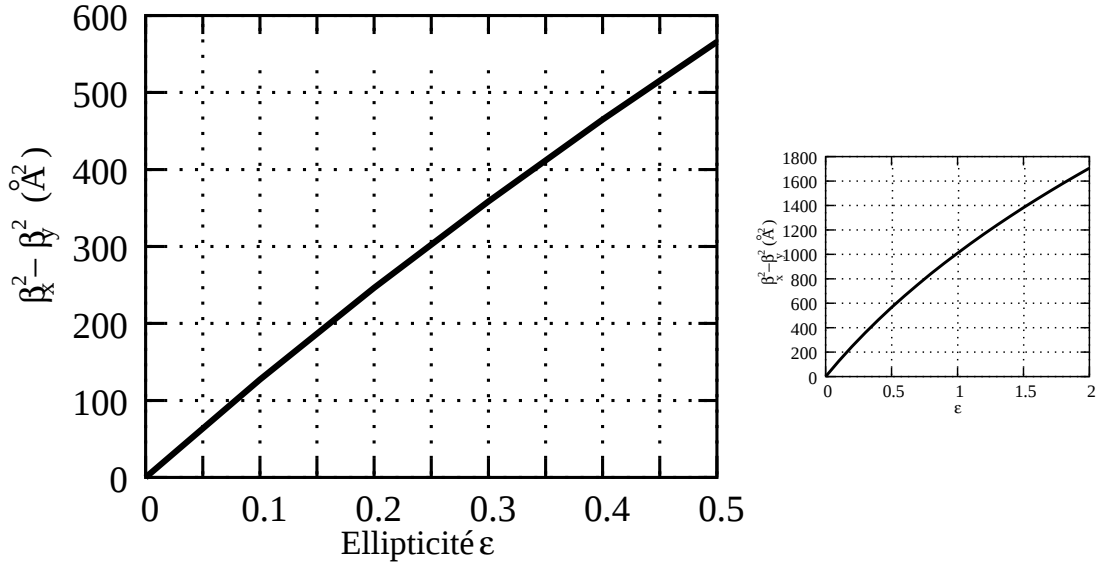


FIG. 4.6 – Evolution de $\beta_x^2 - \beta_y^2$ (défini en (4.28)) en fonction de l'ellipticité ϵ à $R_m = 100 \text{ \AA}$ fixé. A droite se trouvent les courbes tracées pour des valeurs plus grandes de l'ellipticité ($\epsilon \in [0; 2]$)

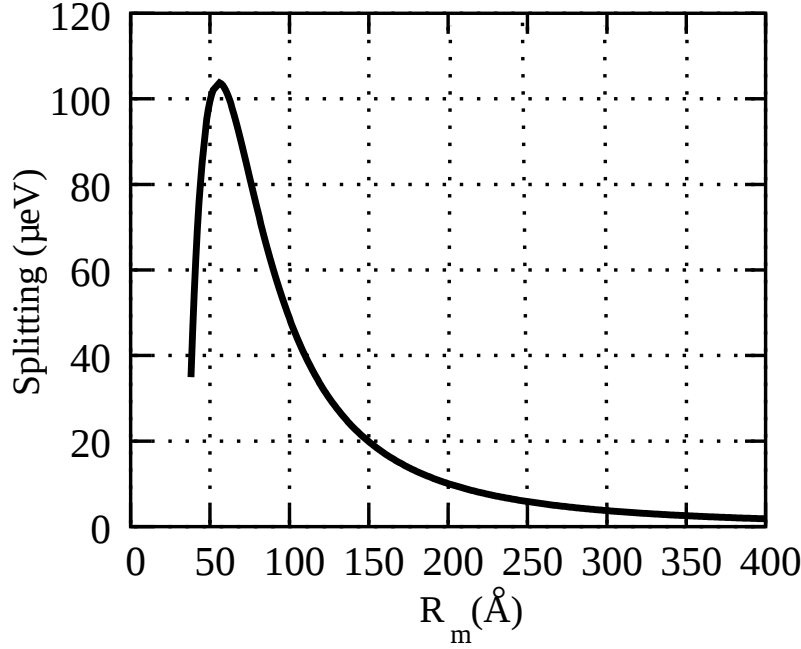


FIG. 4.7 – Evolution du splitting d'échange en fonction du rayon moyen pour une ellipticité $\epsilon = 0.2$

adaptées). La barrière confinante ne joue plus un rôle déterminant dans la différence d'extension suivant les deux axes principaux de l'anisotropie puisque les fonctions d'onde se trouvent dans le centre de la boîte.

4.3.3 Discussion

En comparant les courbes des figures 4.4 page 96 en tiret et 4.5 page précédente, on obtient des résultats similaires pour la valeur du splitting d'échange (la comparaison s'effectue avec la base (ii) puisque dans le modèle variationnel on ne tient pas compte du couplage coulombien) : le caractère D de la fonction d'onde est primordial dans le calcul du couplage d'échange comme fonction de l'ellipticité (à symétrie D). On remarque toutefois que la prise en compte des seuls états S et P (base (iii)) sous estime la valeur du splitting³.

4.4 Influence d'un champ électrique latéral sur le splitting d'échange de la transition interbande fondamentale d'une boîte à symétrie cylindrique

Un champ appliqué suivant la direction x couple les états S , P et D à une particule. La transition interbande fondamentale se décale quadratiquement vers le rouge (effet Stark confiné) et l'électron et le trou se séparent spatialement. Pour

³qui est nulle sur cette même base sans le potentiel coulombien : S n'est alors couplé à aucun état et a fortiori n'est pas affecté par l'anisotropie

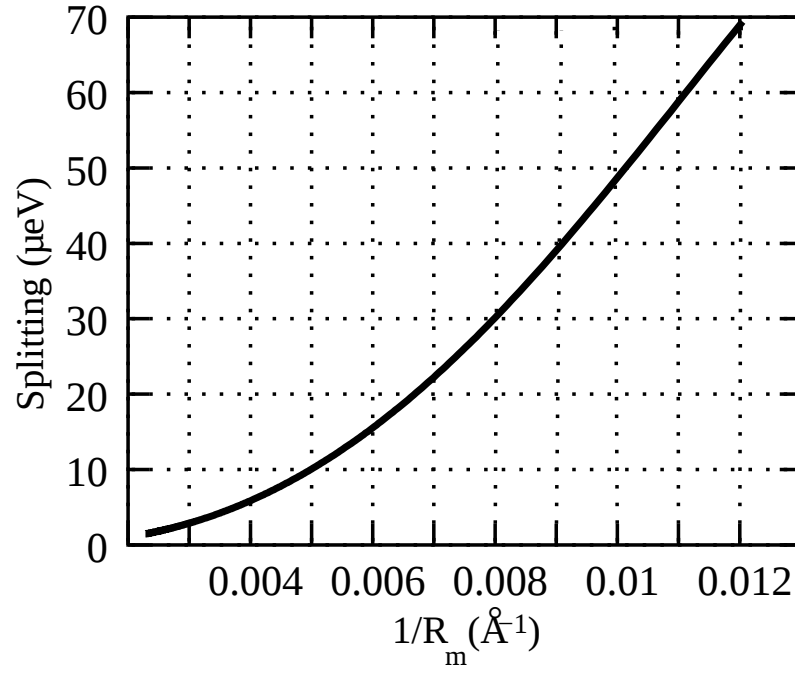


FIG. 4.8 – Evolution du splitting d'échange en fonction de l'inverse rayon moyen pour une ellipticité $\epsilon = 0.2$, R_m variant de 80 à 400 $\text{\AA}$

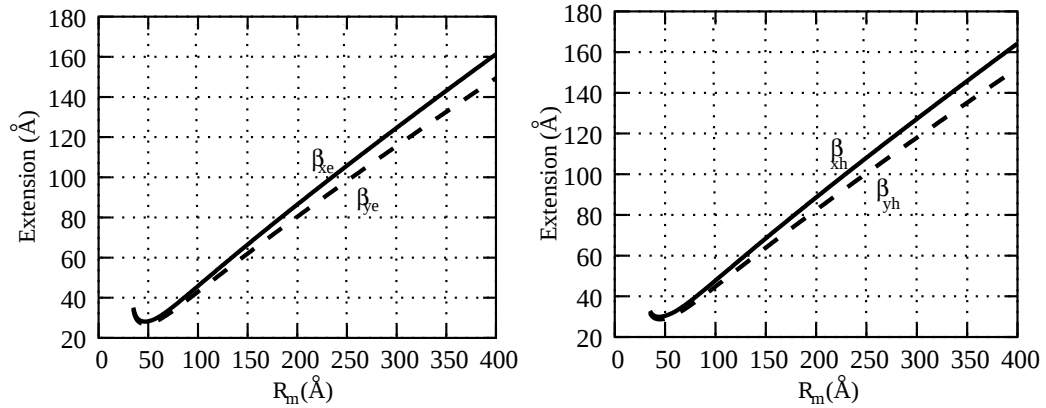


FIG. 4.9 – Evolution des extensions des fonctions d'onde en fonction du rayon moyen à $\epsilon = 0.2$ pour les électrons (à gauche) et pour les trous (à droite)

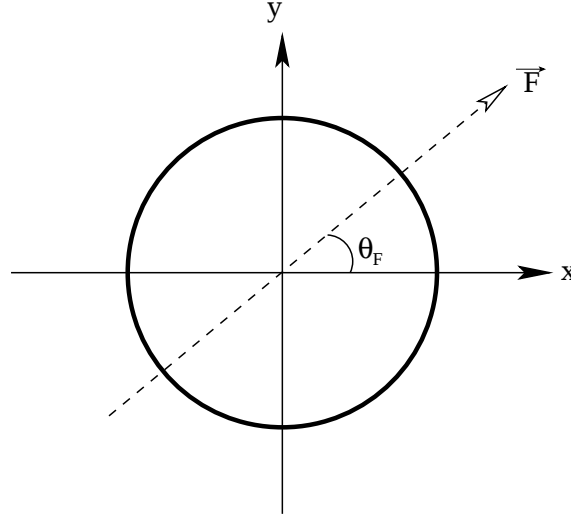


FIG. 4.10 – Définition du champ $\vec{F}$ et de l'angle qu'il réalise avec un axe de référence : cet axe peut être choisis arbitrairement

chacune des particules, les directions parallèle et perpendiculaire au champ ne sont plus équivalentes. Cela implique l'apparition d'un splitting d'échange (induit par le champ) comme nous allons voir dans la suite. On utilisera tout d'abord (paragraphe 4.4.1) une approche 'perturbative' (diagonalisation du potentiel électrostatique dans l'une des trois bases déjà utilisées dans le paragraphe 4.3.1)⁴ et ensuite une approche variationnelle (paragraphe 4.4.2).

4.4.1 Calcul perturbatif

La figure 4.11 page suivante montre que le splitting (en valeur absolue) est une fonction croissante du champ et qu'il évolue de manière quadratique (voir l'interprétation ci-dessous) : la valeur du couplage d'échange donne une mesure de l'anisotropie induite par la présence de cette perturbation extérieure sur l'état fondamental de la boîte.

L'utilisation des équations (4.18)-(4.20) nous permet de montrer que la polarisation des deux nouveaux états est linéaire suivant la direction du champ et sa perpendiculaire. Ce résultat est plus clair dans le cadre d'une base réduite, comme développé dans la suite.

On remarque que la valeur du splitting d'échange est négative puisqu'elle est associée à une valeur de $\theta = \theta_F$ (voir figure 4.3 page 94). Cela signifie que les photons émis suivant la direction du champ sont plus bas en énergie que ceux émis suivant la direction perpendiculaire.

⁴ce calcul n'est pas perturbatif au sens du paragraphe 4.3.1, où les éléments de matrice sont approchés. Ici, les éléments de matrice du potentiel électrostatique sont évalués exactement

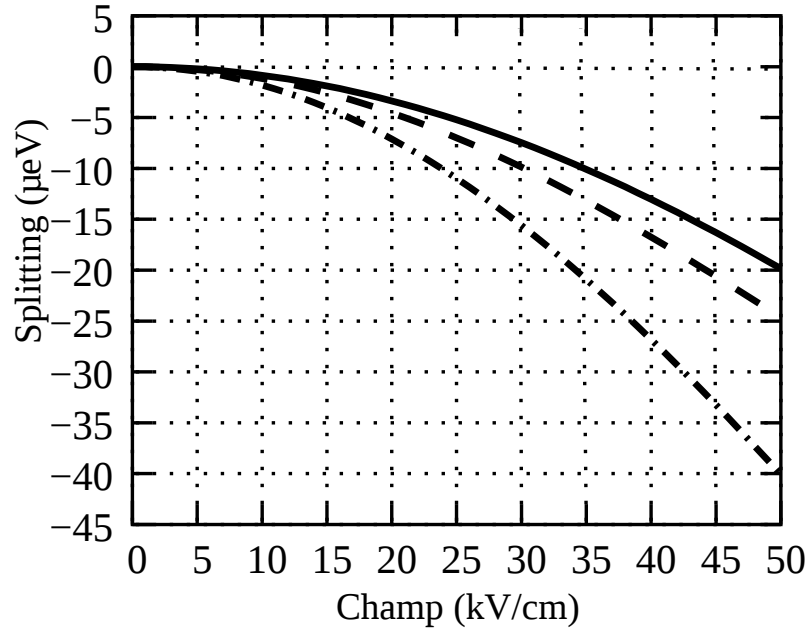


FIG. 4.11 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ pour une boîte ronde, $R = 100 \text{ \AA}$.

Interprétation dans une base réduite[54]

Plaçons nous dans la base des états les plus bas en énergie (voir la figure 1.13 page 28)

$$\{|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{y_h}}\rangle\}$$

L'état fondamental est alors une combinaison des états de la base :

$$|\Psi_{fond}\rangle = \alpha |\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle + \mathcal{C}(F) \cos(\theta_F) |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{x_h}}\rangle + \mathcal{C}(F) \sin(\theta_F) |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{y_h}}\rangle \quad (4.33)$$

où $\mathcal{C}(F)$ est proportionnel à F .

Un calcul du splitting d'échange nous donne (voir annexe D.) :

$$\langle \Psi_{fond}^{ex} | \mathcal{H} | \Psi_{fond}^{ex} \rangle \propto F^2 e^{i.2\theta_F} \quad (4.34)$$

on voit d'une part que l'énergie d'échange est proportionnelle à F^2 .

D'autre part, le terme du couplage d'échange non diagonal (sur la base $|+1\rangle$, $|-1\rangle$) est proportionnel à $e^{i.2\theta_F}$.

D'après les équations (4.18)-(4.22) et la figure 4.3 page 94, la polarisation de la lumière émise est linéaire suivant la direction du champ et sa perpendiculaire.

La présence d'un champ brise donc la polarisation circulaire de la boîte : les deux états lourds optiquement actifs ne sont plus dégénérés et chacun des nouveaux états envoie de la lumière polarisée rectilignement suivant l'axe du champ ou sa perpendiculaire.

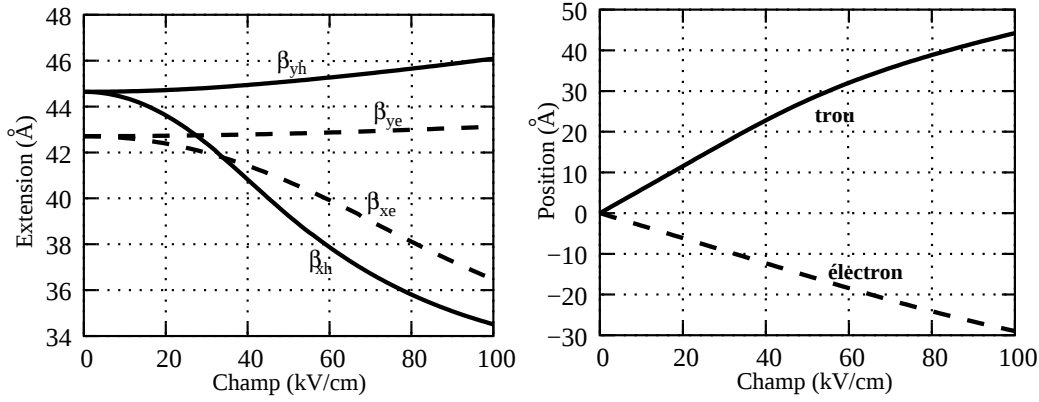


FIG. 4.12 – Evolution de l'extension des fonctions d'onde (β_x et β_y) à gauche et position (x_0) à droite pour l'électron en tiret et pour le trou en trait plein en fonction du champ pour une boîte $R = 100$ Å à symétrie cylindrique

La structure fine de la transition fondamentale est associée au couplage (via le champ électrique) de l'état $|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle$ aux états $|\Psi_{S_e} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{y_h}}\rangle$ directement affectés par l'anisotropie (par leur composante P) tout comme l'anisotropie faisait intervenir le couplage de Coulomb.

4.4.2 Calcul variationnel

De la même façon que dans la section précédente, nous allons utiliser une fonction d'onde variationnelle afin de mieux évaluer l'effet d'un champ latéral fort sur la structure fine de la transition optique de l'exciton.

Calcul du splitting d'échange

On rappelle l'équation (1.35) pour l'état fondamental :

$$\Psi_{fond}^{var}(x, y, z) = N \cdot e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2\beta_x^2}} e^{-\frac{y^2}{2\beta_y^2}} e^{-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}}$$

où le champ est appliqué suivant l'axe x e la boîte ronde.

A champ nul, on a $\beta_x = \beta_y$ et $x_0 = 0$. Les déformations introduites par le champ seront prise en compte par les dépendances avec F des 5 paramètres variationnels (voir figure 4.12).

La fonction d'onde de la paire sera toujours approchée par (4.26)

$$\Psi_{fond}^{var}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \Psi_{fond(e)}^{var}(\vec{r}_e) \Psi_{fond(h)}^{var}(\vec{r}_h)$$

on ne prendra pas en compte les modifications apportées par le couplage de Coulomb.

Un calcul du splitting d'échange sur cette fonction d'onde donne :

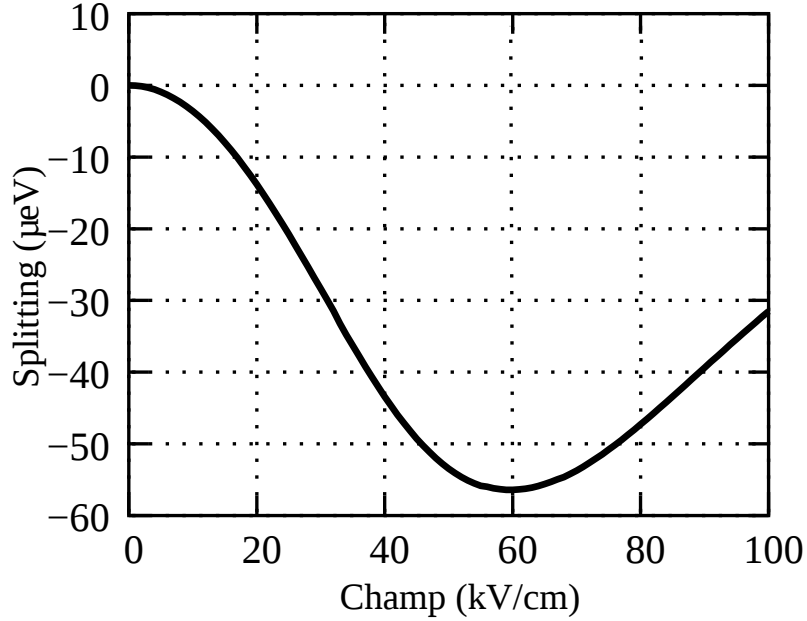


FIG. 4.13 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ pour une boîte ronde, $R = 100$ Å (calcul variationnel)

$$\epsilon_{nd}^{ech} \propto \mathcal{A}(F) \int dq_{\perp} \left[q_{\perp}^2 e^{\frac{\sigma_z^2 q_{\perp}^2}{2}} (1 - \operatorname{erf}(\frac{\sigma_z q_{\perp}}{\sqrt{2}})) e^{-\frac{(\beta_x^2 + \beta_y^2) q_{\perp}^2}{4}} I_1(\frac{\beta_x^2 - \beta_y^2}{4} q_{\perp}^2) \right] \quad (4.35)$$

où $\mathcal{A}$ représente une fonction décroissante du champ F , avec $\mathcal{A}(-F) = \mathcal{A}(+F)$.

β_x , β_y et σ_z représentent les 'étalements moyens' définis dans la section précédente (expression (4.28)).

Lorsque le champ est faible, le splitting d'échange est approximativement proportionnel à :

$$\epsilon_{nd}^{ech} \propto \mathcal{A}(F) \mathcal{I}(q_{\perp}) (\beta_x^2(F) - \beta_y^2(F)) \quad (4.36)$$

où $\mathcal{I}(q_{\perp})$ représente une intégrale sur $q_{\perp}$ (facteur de forme) et $\mathcal{A}(F)$ la fonction décroissante de l'expression (4.35). Les dépendances en F de β_x et β_y sont illustrées figure 4.12 page ci-contre à droite.

On trouve donc que ϵ_{nd}^{ech} est négatif ($\beta_x < \beta_y$) et varie en $\approx F^2$ lorsque le champ est faible.

4.4.3 Discussion

La différence observée figure 4.11 page 103 entre le calcul perturbatif sur les éléments de la base (ii) et de la base constituée des éléments S et P sans couplage coulombien (base (iv)) est attribuée à la différence d'extension des fonctions d'onde entre les deux directions considérées : celle du champ et celle perpendiculaire au champ. En effet, comme déjà souligné section 4.3, l'apparition du splitting d'échange

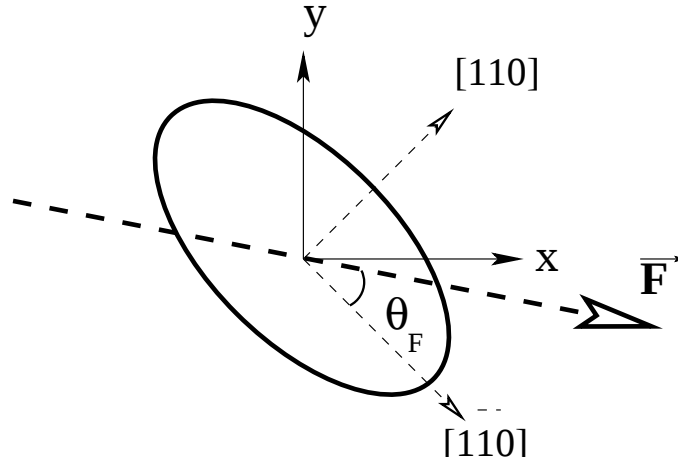


FIG. 4.14 – Superposition de l'anisotropie et du champ : on prend comme définition de l'angle θ_F l'angle que fait le vecteur champ électrique $\vec{F}$ avec la direction $[1\bar{1}0]$

résulte de la différence d'étalement de la fonction d'onde suivant deux directions perpendiculaires. En supposant que le champ est placé suivant l'axe x , le calcul sur les éléments de la base (iv) établit une différence $\beta_x^2 - \beta_y^2$ négative : l'extension suivant la direction x est réduite. Ce résultat est lié directement à la présence de la barrière comme nous le verrons plus tard. Lorsque l'on prend en compte les états D (base (ii)), l'état D_x est couplé à l'état P_x de la même façon que P_x est couplé à S (via la chaîne, $l \rightarrow l \pm 1$) : la prise en compte de l'état D_x dans le calcul de l'état fondamental induit une extension suivant x plus importante que suivant sa direction perpendiculaire y ('symétrie elliptique'). La prise en compte des états D va donc affaiblir la brisure de symétrie induite par la prise en compte des seuls états S et P seuls.

Ces remarques montrent à quel point la valeur du splitting d'échange est sensible aux détails de la fonction d'onde.

4.5 Superposition de l'anisotropie de forme et du champ électrique latéral

Jusqu'ici, nous avons tenu compte séparément des effets induits par l'anisotropie de forme et par la présence d'un champ latéral sur la transition lourde fondamentale : dans les deux cas nous avons obtenu une levée de dégénérescence des états brillants, à laquelle est associée l'apparition d'une émission linéairement polarisée.

Dans ce paragraphe, nous allons discuter la structure fine des états radiatifs lorsque l'on prend en compte les deux effets, aussi bien dans une approche perturbative (paragraphe 4.5.3) qu'à l'aide d'une fonction variationnelle (paragraphe 4.5.4).

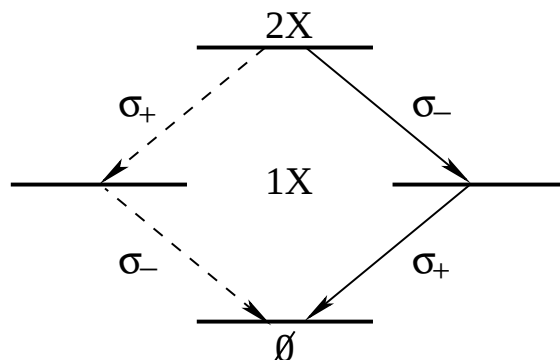


FIG. 4.15 – Schéma de la désexcitation radiative en cascade d'un biexciton dans le cas d'une boîte à symétrie cylindrique

4.5.1 Annulation du splitting d'échange : résultats et enjeux

Des résultats expérimentaux[56, 57] montrent que dans certains cas, une lumière polarisée circulairement peut être observée après une excitation non-résonante qui dans un premier temps pourrait impliquer que les boîtes sondées sont parfaitement circulaires. Nous allons montrer que la présence d'un champ externe (et à fortiori interne) peut annuler le splitting d'échange intrinsèque (dû à l'anisotropie de forme) responsable de l'existence des deux transitions linéaires observées dans la plupart des expériences.

Nous avons déjà mentionné que l'asymétrie du potentiel de confinement peut se révéler être un obstacle dans la réalisation de source de photons corrélés en vue d'application en cryptographie quantique par exemple.

En effet, dans le cas d'une cascade à deux photons où un biexciton ($2X$) se désexcite pour donner un exciton ($1X$) optiquement actif (parmi les deux possibles) en émettant un photon, puis l'exciton restant va se désexciter pour donner un autre photon. Théoriquement⁵, les deux photons issus des deux chemins possibles résultent entièrement des propriétés optiques de l'exciton intermédiaire (voir la figure 4.15).

Pour une boîte symétrique, ces deux chemins sont indiscernables en émettant de la lumière polarisée circulairement (figure 4.15). Dans le cas d'une boîte asymétrique, la dégénérescence de l'exciton est levée via l'interaction d'échange et le splitting est plus grand que l'élargissement radiatif, les deux chemins deviennent discernables et les polarisations sont linéaires.

Nous allons montrer dans la suite que l'application d'un champ suivant la bonne direction permettra d'annuler le splitting créé par l'anisotropie de forme.

⁵En fait, d'autres facteurs sont à prendre en compte comme le spin-flip ou les processus de décohérence qui rendent aléatoire l'état intermédiaire $1X$

4.5.2 Evolution de l'angle de polarisation pour un champ placé suivant une direction différente des axes principaux de l'anisotropie de forme ($\theta_F \neq 0$ ou $\pi/2$)

Origine

Les résultats précédents montrent que la levée de dégénérescence de l'exciton tire son origine de l'asymétrie de la fonction d'onde et que cela a conduit à l'apparition de deux polarisations linéaires suivant les axes principaux de l'asymétrie. La question est alors de savoir quel est l'angle de polarisation θ lorsque les éléments perturbateurs (anisotropie de forme et champ électrique) n'ont pas les mêmes axes d'application.

Seul un calcul via l'expression (4.18) nous fournira une information sur l'angle de polarisation θ (voir figure 4.3 page 94)

En effet, le terme

$$\left| \int d\vec{r} \Psi(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (4.37)$$

comporte un terme en $A_c \cos(2\theta_q) + A_s \sin(2\theta_q)$ résultant de l'intégration sur $\vec{r}$ du produit de $e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}$ par des éléments de la base des 25 états pris en considération.

L'intégration sur θ_q (voir équation (4.18)) donne

$$\int_0^{2\pi} d\theta_q e^{2i\theta_q} \left| \int d\vec{r} \Psi(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 = \pi(A_c + iA_s) = \pi A e^{i\Phi} \quad (4.38)$$

où $A = \sqrt{A_c^2 + A_s^2}$ et la phase Φ est égale au double de l'angle de polarisation (voir équations (4.20)-(4.22)).

C'est de cette façon que l'on obtient le facteur $e^{2i\theta_F}$ dans le modèle simple de l'équation (4.27)

Résultats

La figure 4.16 page suivante montre que la dépendance de l'angle de polarisation de la lumière émise est une fonction qui tend vers l'angle que fait le champ avec l'axe de référence $[1\bar{1}0]$, grand axe de la boîte elliptique (voir la figure 4.14 page 106). Cette limite est atteinte plus rapidement dans le cas où l'on ne considère que les états S et P parce que dans ce cas, on sous-estime la déformation de l'état fondamental à champ nul.

Une première conséquence importante est que la lumière émise est toujours polarisée suivant deux axes orthogonaux, qui reflète la compétition entre ceux imposés par le confinement anisotrope et par le champ latéral.

Un autre résultat important est présenté sur la figure 4.17 page suivante. On voit que la superposition d'un champ de l'ordre de quelques kV/cm sur une boîte anisotrope ($\epsilon > 0.1$) a très peu d'influence sur l'angle de polarisation de la lumière émise : cela implique que la présence de particules créant des microchamps au voisinage de la boîte ne va pas influencer les mesures de polarisation des expérimentateurs (pour plus de détails, voir la discussion paragraphe 4.5.2).

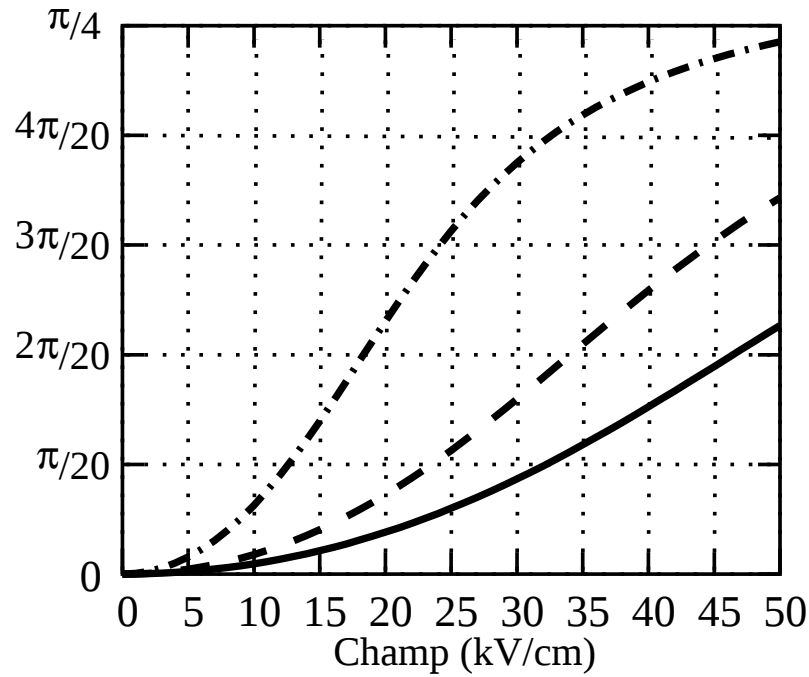


FIG. 4.16 – Evolution de l'angle de polarisation pour les différents cas d'étude ($\epsilon = 0.2$, $\theta_F = \pi/4$) ; (3 courbes $\leftrightarrow$ 3 bases)

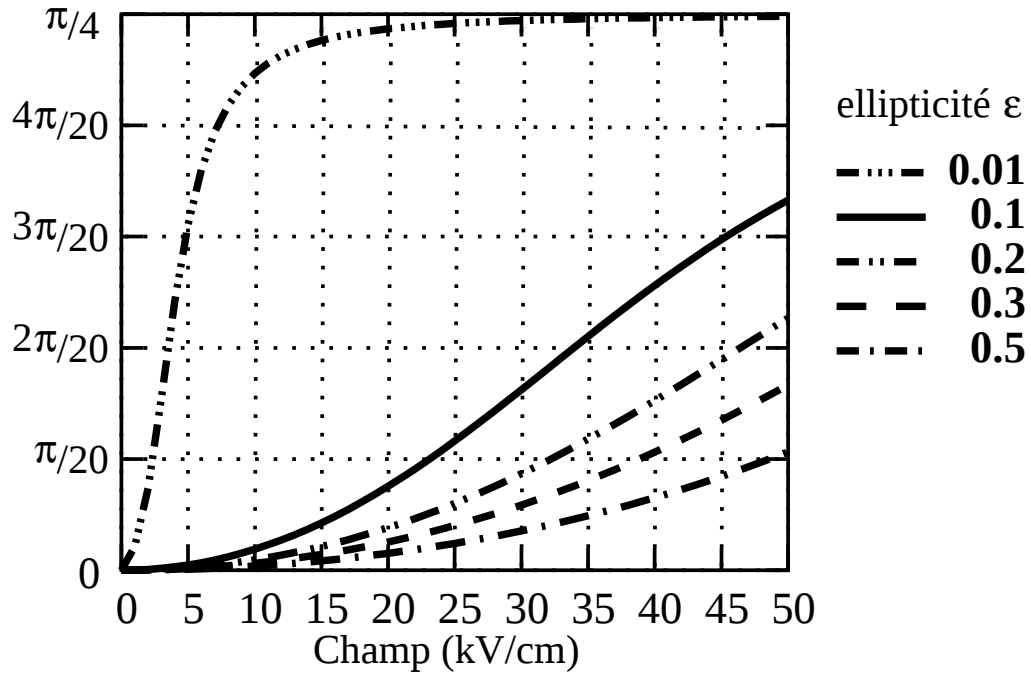


FIG. 4.17 – Evolution de l'angle de polarisation en fonction du champ pour différentes valeurs de l'ellipticité pour $\theta_F = \pi/4$ avec la prise en compte du potentiel coulombien sur la base des 25 états de la figure 1.13 page 28

Dans le cas de champs plus importants, l'angle de polarisation de la lumière émise par les boîtes peut différer de celui habituellement mesuré suivant les directions de clivage.

4.5.3 Superposition : cas particuliers dans le cadre du modèle perturbatif

Evolution du splitting d'échange pour un champ placé le long du grand axe de l'ellipse ($\theta_F = 0$)

Les discussions précédentes nous ont permis de confirmer que la levée de dégénérescence de la transition fondamentale (conséquence de l'interaction d'échange) dans les boîtes quantiques de semiconducteur résulte de la brisure de symétrie induite par le potentiel ressenti par la paire électron-trou (potentiel de confinement de la boîte (section 4.3) ou bien potentiel extérieur (section 4.4)) suivant deux axes de références.

La superposition de l'anisotropie de forme (grand axe suivant la direction de clivage $[1\bar{1}0]$) et d'un champ suivant l'élongation de la boîte, met en présence deux phénomènes antagonistes : d'une part, l'anisotropie aura tendance à étendre la fonction d'onde suivant la direction $[1\bar{1}0]$ et d'autre part, le champ puisqu'il va 'pousser' les fonctions d'onde en bord de boîte⁶ aura tendance à diminuer les extensions des fonctions d'onde de l'électron et du trou suivant cette direction pour minimiser le potentiel ressenti par les particules (voir section 4.6). Ceci à pour résultat de réduire l'asymétrie entre les deux directions de clivage et par conséquent de diminuer la levée de dégénérescence de la transition fondamentale comme le montre la figure 4.18 page ci-contre. Plus précisément, l'étalement des fonctions d'onde suivant le grand axe diminuera à cause du champ.

La restitution artificielle d'un étalement isotrope de la fonction d'onde permet l'annulation du splitting à champ fort.

Il faut souligner ici que l'effet principal du potentiel coulombien par rapport à une absence de sa prise en compte (courbe pleine et en tiret sur la figure 4.18 page suivante) est (outre augmenter la valeur du splitting d'échange en ajoutant des états supplémentaires à son calcul (voir paragraphe 4.3.1)) de retarder l'effet du champ sur la restitution d'une certaine symétrie à la paire des deux particules : il y a opposition entre l'effet du champ qui est de séparer les fonctions d'onde des deux entités et leur attraction coulombienne. Cette remarque est importante car la restitution de la symétrie de la fonction d'onde se fait via l' 'approche' de la barrière comme nous le verrons par la suite.

Evolution du splitting d'échange pour un champ placé le long du petit axe de l'ellipse ($\theta_F = \pi/2$)

Contrairement au cas précédent, le champ vient renforcer l'effet de l'anisotropie de forme et donc augmenter la valeur du splitting d'échange (voir la figure 4.19 page ci-contre).

⁶L'électron d'un côté et le trou de l'autre, le long du grand axe

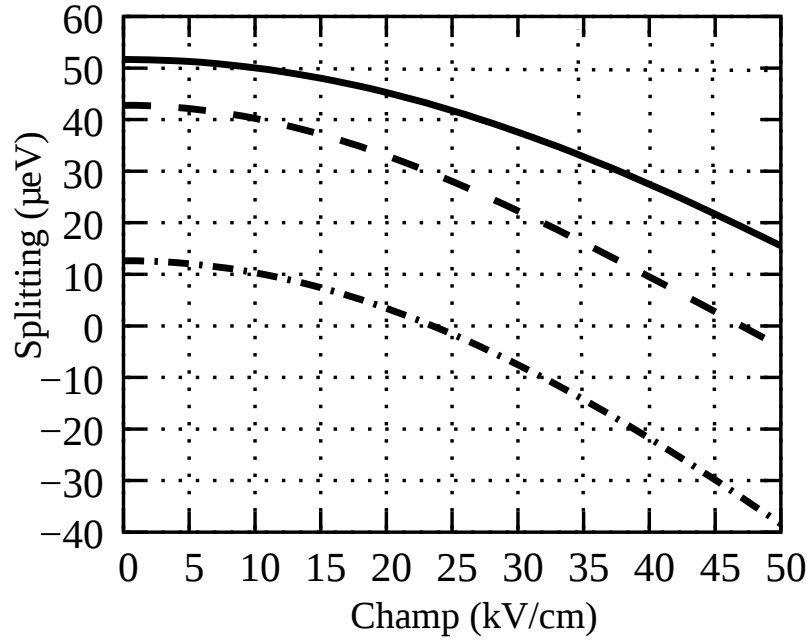


FIG. 4.18 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ placé le long de la direction $[1\bar{1}0]$, $\epsilon = 0.2$; (3 courbes $\leftrightarrow$ 3 bases)

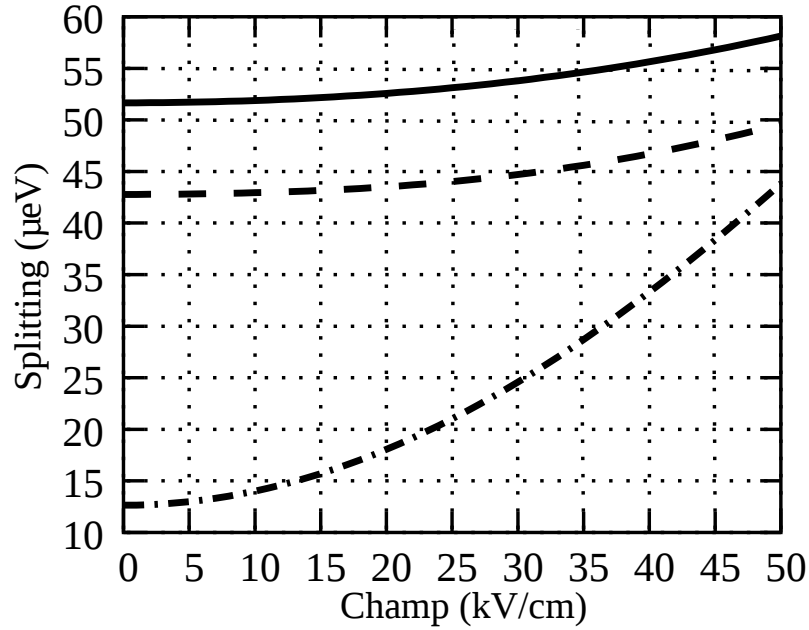


FIG. 4.19 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ placé le long de la direction $[110]$, $\epsilon = 0.2$; (3 courbes $\leftrightarrow$ 3 bases)

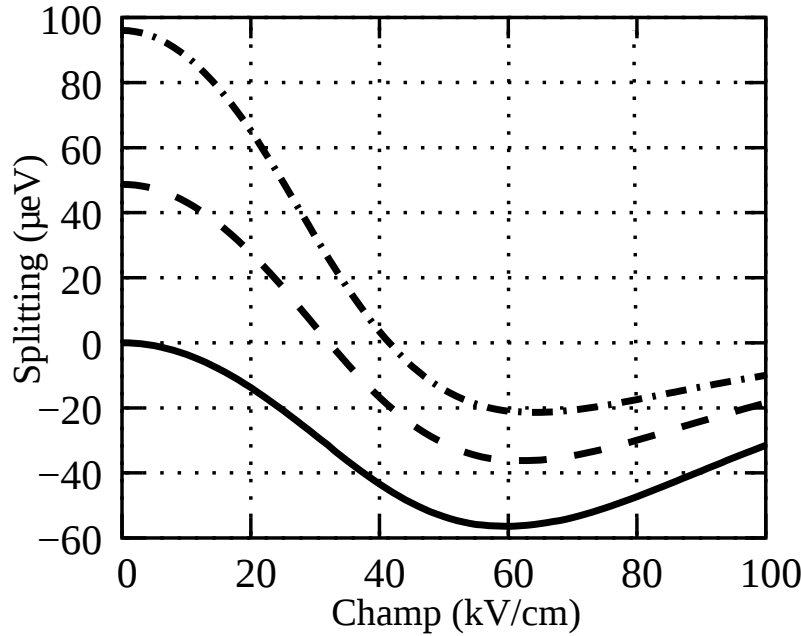


FIG. 4.20 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ pour différentes valeurs de l'ellipticité : $\epsilon=0$ en trait plein, $\epsilon=0.2$ en tirets, $\epsilon=0.4$ en tiret-points. Le rayon moyen est fixé à $R_m = 100 \text{ \AA}$, $\vec{F} \parallel [1\bar{1}0]$; calcul variationnel

4.5.4 Superposition : cas particulier dans la cadre du modèle variationnel

En fonction du champ placé le long de l'axe $[1\bar{1}0]$ (grand axe)

La figure 4.20 montre que l'on peut annuler le splitting d'échange (comme nous l'avons déjà vu dans le cas d'un calcul en perturbation) en appliquant le champ électrique dans le sens de l'élongation de la boîte (direction $[1\bar{1}0]$) : la présence du champ va affaiblir l'effet d'anisotropie dû à l'ellipticité de la boîte et restituer une certaine symétrie à la combinaison⁷ des fonctions d'onde de l'électron et du trou, comme nous le verrons dans la suite.

En effet, lors de l'application d'un champ, les fonctions d'onde de l'électron et du trou vont se déplacer (paramètre x_0), l'électron allant dans le sens opposé du champ et le trou dans le sens du champ (cela explique la diminution du recouvrement des fonctions d'onde en présence d'un champ croissant). Ces fonctions d'onde vont aller en bord de boîte et pour minimiser l'énergie potentielle due au confinement dans le matériau InAs, l'étalement suivant la direction du champ diminue pour que la fonction d'onde 'ressente' le potentiel le plus faible possible : même si cet effet a tendance à augmenter l'énergie cinétique des particules, l'énergie totale diminue. Ainsi, la différence d'étalement des fonctions d'onde entre les directions $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ diminue et le splitting d'échange étant fonction de cet étalement pourra s'annuler

⁷Les deux fonctions d'onde ne se symétrisent pas à priori simultanément

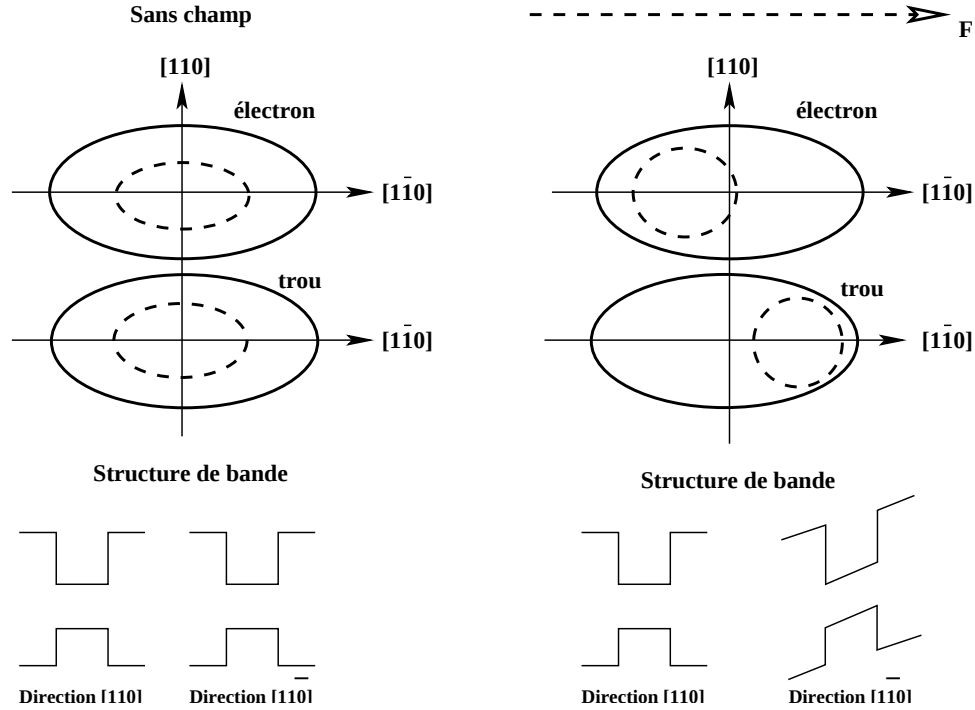


FIG. 4.21 – Influence (schématique) de l'anisotropie et du champ sur les fonctions d'onde de l'électron et du trou

(voir les figures 4.21 à 4.23 page suivante).

Cet effet est illustré par la comparaison des figures 4.20 page ci-contre et 4.23 page suivante : le splitting d'échange s'annule pour $F \approx 32 \text{ kV/cm}$ ($\epsilon = 0.2$), ce qui correspond à l'égalisation des étalements composites $\beta_x \approx \beta_y \approx 43 \text{ \AA}$ (voir la figure 4.24 page 115).

En fonction du champ placé le long de l'axe $[110]$ (petit axe)

La figure 4.25 page 115 montre l'évolution du splitting lorsque le champ est placé le long du petit axe : l'effet de l'anisotropie due à l'ellipticité va être renforcé par la présence de ce champ puisque la fonction d'onde va se déplacer en bord de boîte suivant la direction $[110]$ (le paramètre variationnel n'est plus x_0 mais y_0).

Le champ vient tout d'abord renforcer ce splitting de manière quadratique (voir équation (4.27) paragraphe 4.3.2 avec le calcul en perturbation sur la base réduite) puis le fait décroître via la diminution du recouvrement des fonctions d'onde.

4.5.5 Annulation du splitting d'échange : champ versus ellipticité

La figure 4.26 page 116 montre l'évolution de la valeur du champ à appliquer dans le but d'annuler le splitting d'échange en fonction de l'ellipticité. Il est d'autant plus fort que l'ellipticité est grande ce qui est une conséquence directe d'un rétablissement plus difficile de la symétrie des étalements composites avec une ellipticité croissante

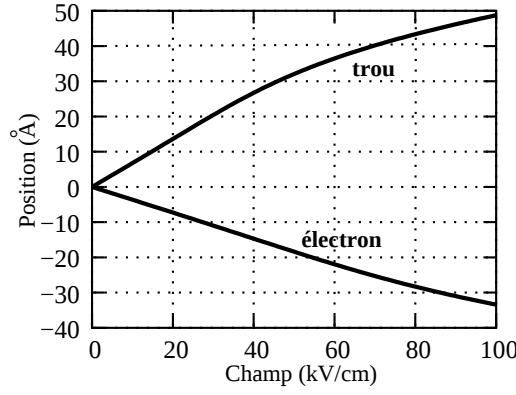


FIG. 4.22 – Evolution de la position de l'électron x_{0e} et du trou x_{0h} par rapport au centre de la boîte suivant la direction $[110]$ (grand axe) en fonction du champ placé le long de cet axe, pour une boîte d'ellipticité $\epsilon = 0.2$ et de rayon moyen $R_m = 100 \text{ Å}$

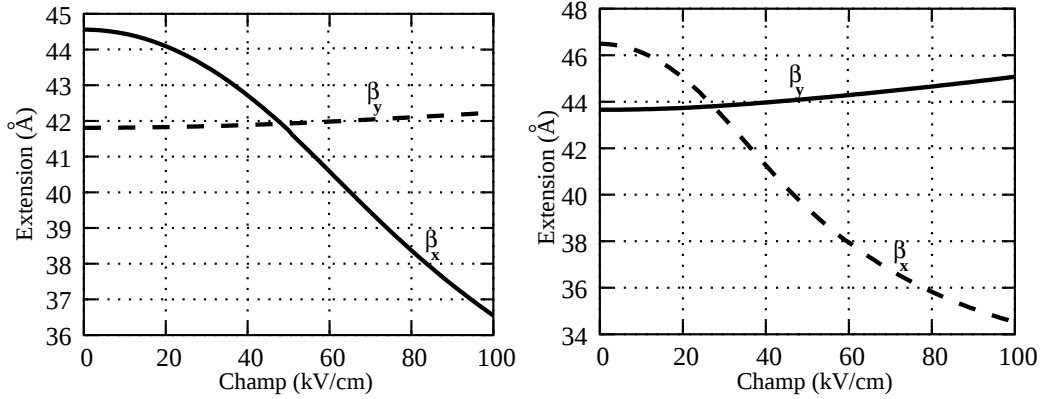


FIG. 4.23 – Evolution de l'extension des fonctions d'onde (β_x et β_y) pour l'électron (à gauche) et pour le trou (à droite) en fonction du champ placé le long du grand axe pour une boîte $\epsilon = 0.2$, $R_m = 100 \text{ Å}$

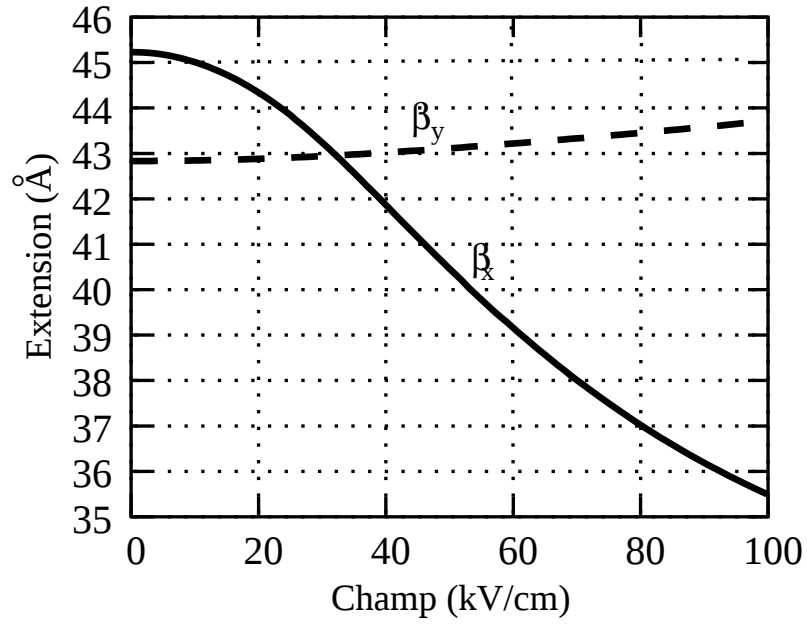


FIG. 4.24 – Evolution des étalements composites (β_x et β_y) en fonction du champ placé le long du grand axe pour une boîte $\epsilon = 0.2$, $R_m = 100$ Å

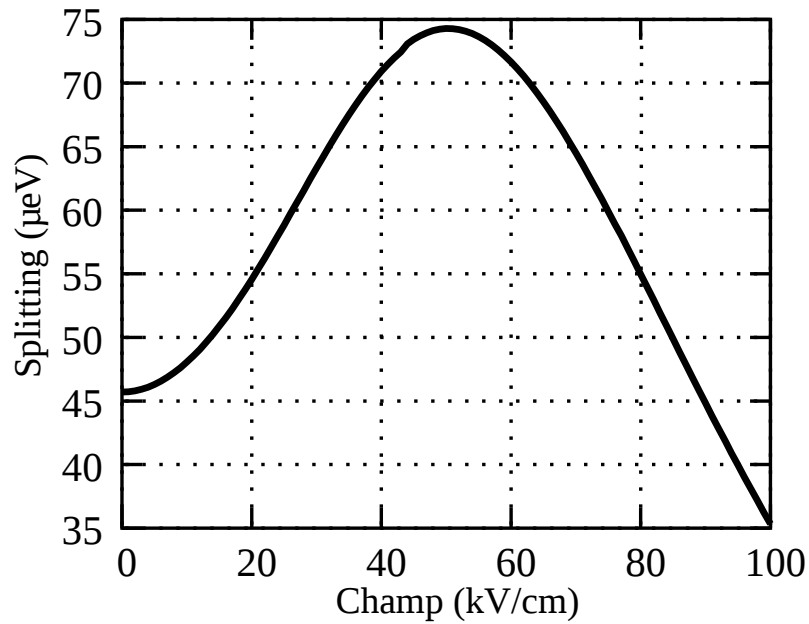


FIG. 4.25 – Evolution du splitting d'échange en fonction du champ placé le long de l'axe $[110]$. $R_m = 100$ Å, $\epsilon = 0.2$

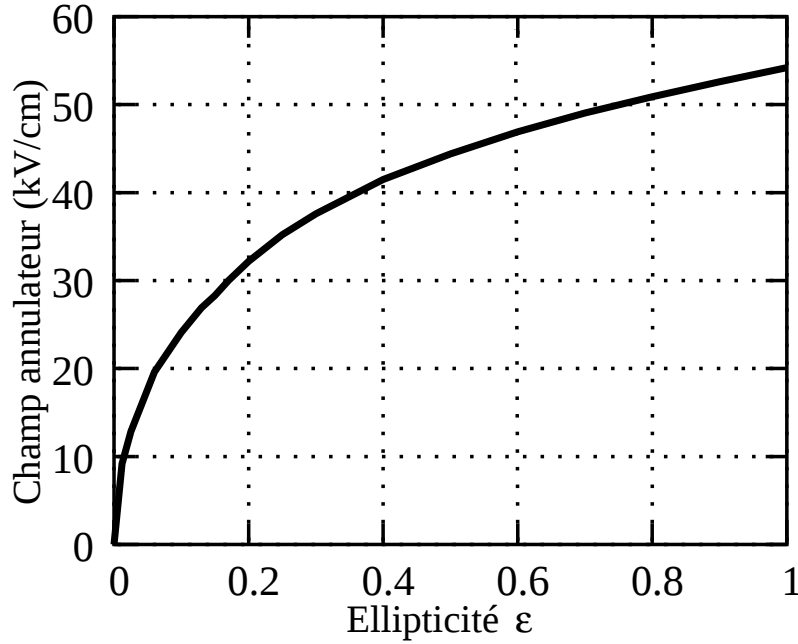


FIG. 4.26 – Valeur du champ 'annuleur' du splitting en fonction de l'ellipticité ϵ de la boîte

($\beta_x^2 - \beta_y^2 \propto \epsilon$, expression (4.30)).

On montre que pour des valeurs faibles de ϵ (et donc du champ électrique F) :

$$F \propto \epsilon^{0.44} \approx \sqrt{\epsilon} \quad (4.39)$$

Ce résultat est discuté par la suite à l'aide d'un modèle simple pour les états confinés.

4.6 Modèle simplifié du confinement latéral de la boîte : l'oscillateur harmonique 2D anisotrope

Dans les sections précédentes, nous avons vu que la valeur du splitting d'échange donne une mesure de l'anisotropie du potentiel des états électroniques de la boîte dans le plan et que son évolution est sensible aux détails de la méthode de calcul utilisée. Cette section va nous permettre à partir du modèle simple de l'oscillateur harmonique 2D anisotrope, de souligner davantage ces points, et de mieux comprendre certains aspects des résultats obtenus précédemment.

4.6.1 Energies propres et état fondamental de la boîte

Considérons une boîte quantique dont les dimensions latérales $2a$ et $2b$ (pour reprendre les notations de la figure 1.11 page 23) sont largement supérieures à la hauteur h . Dans une telle structure, l'énergie cinétique de confinement suivant l'axe z est bien supérieure à toutes les autres énergies caractéristiques du système : nous

pouvons alors découpler le mouvement des porteurs suivant le plan et suivant l'axe z .

Nous allons supposer que chaque porteur (électron ou trou) est soumis à un potentiel effectif bidimensionnel $V(x, y)$ avec un profil parabolique caractérisé par les deux pulsations ω_x et ω_y :

$$V(x, y) = \frac{1}{2}m\omega_x^2x^2 + \frac{1}{2}m\omega_y^2y^2 \quad (4.40)$$

où m est la masse de la particule confinée.

Les énergie propres des niveaux sont alors données par :

$$E_{N_x, N_y} = (N_x + \frac{1}{2})\hbar\omega_x + (N_y + \frac{1}{2})\hbar\omega_y \quad (4.41)$$

L'état fondamental est alors décrit par :

$$\Psi_{fond}(x, y) = \frac{1}{(\sqrt{\pi}\beta_x)^{1/2}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\beta_x^2}\right) \frac{1}{(\sqrt{\pi}\beta_y)^{1/2}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\beta_y^2}\right) \quad (4.42)$$

où $\beta_i = \sqrt{\hbar/m\omega_i}$ $i=x, y$.

4.6.2 Présence d'un champ latéral

Plaçons désormais un champ F dans le plan suivant l'axe x , le potentiel de l'équation (4.38) devient :

$$V^{champ}(x, y) = \frac{1}{2}m\omega_x^2x^2 + \frac{1}{2}m\omega_y^2y^2 - qFx \quad (4.43)$$

pour le choix $e > 0$: $q = -e$ pour l'électron, $q = +e$ pour le trou,
soit

$$V^{champ}(x, y) = -\frac{e^2F^2}{2m\omega_x^2} + \frac{1}{2}m\omega_x^2\left(x - \frac{qF}{m\omega_x^2}\right)^2 + \frac{1}{2}m\omega_y^2y^2 \quad (4.44)$$

Le fondamental s'écrit alors :

$$\Psi_{fond}^{champ}(x, y) = \frac{1}{(\sqrt{\pi}\beta_x)^{1/2}} \exp\left(-\frac{\left(x - \frac{qF}{m\omega_x^2}\right)^2}{2\beta_x^2}\right) \frac{1}{(\sqrt{\pi}\beta_y)^{1/2}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\beta_y^2}\right) \quad (4.45)$$

Cette equation traduit le déplacement de la fonction d'onde sous l'effet du champ.

On peut réécrire cette équation comme :

$$\Psi_{fond}^{champ}(x, y) = e^{-\frac{e^2F^2}{2m^2\omega_x^4\beta_x^2}} \Psi_{fond}(x, y) \exp\left(-\frac{qF}{m\omega_x^2\beta_x^2}x\right) \quad (4.46)$$

soit en élevant au carré :

$$\left(\Psi_{fond}^{champ}(x, y)\right)^2 = e^{-\frac{e^2F^2}{m^2\omega_x^4\beta_x^2}} \left(\Psi_{fond}(x, y)\right)^2 \exp\left(-\frac{2qF}{m\omega_x^2\beta_x^2}x\right) \quad (4.47)$$

Un développement limité à l'ordre 1 de $\exp(-\frac{2eF}{m\omega_x^2\beta_b^2}x)$ donne :

$$\left(\Psi_{fond}^{champ}(x, y)\right)^2 \approx e^{-\frac{e^2 F^2}{m^2 \omega_x^4 \beta_x^2}} \Psi_{fond}^2(x, y) \left[1 - \frac{2qF}{m\omega_x^2 \beta_x^2}x\right] \quad (4.48)$$

La variance Var_x ⁸ de Ψ^2 suivant x et Var_y suivant y ne change pas en présence du champ pour la fonction exacte (4.44) qui prend en compte tout les termes du développement de Taylor :

$$\text{Var}_x(\Psi^2) = \frac{\beta_x^2}{2} \quad ; \quad \text{Var}_y(\Psi^2) = \frac{\beta_y^2}{2} \quad (4.49)$$

le champ ne fait que déplacer la fonction d'onde sans la déformer.

Par contre, le résultat approché (4.47) donne :

$$\text{Var}_x\left[(\Psi_{fond}^{champ})^2\right] = e^{-\frac{e^2 F^2}{m^2 \omega_x^4 \beta_x^2}} \left(\frac{\beta_x^2}{2} - \left(\frac{eF}{m\omega_x^2}\right)^2\right) = \quad (4.50)$$

$$\text{Var}_y\left[(\Psi_{fond}^{champ})^2\right] = e^{-\frac{e^2 F^2}{m^2 \omega_x^4 \beta_x^2}} \frac{\beta_y^2}{2} \quad (4.51)$$

soit puisque $\beta_i = \sqrt{\hbar/m\omega_i}$:

$$\text{Var}_x\left[(\Psi_{fond}^{champ})^2\right] = e^{-\frac{e^2 F^2}{m^2 \omega_x^4 \beta_x^2}} \frac{\beta_x^2}{2} \left(1 - 2\left(\frac{eF\beta_x}{\hbar\omega_x}\right)^2\right) \quad (4.52)$$

L'effet d'une hauteur finie de la barrière dans une boîte ($V(x,y)=V_0$ pour $\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} \geq 1$) est de tronquer le nombre d'états excités liés qui auront une influence sur l'état fondamental.

Le developpement limité en (4.48) mime un couplage de S au seul état P . Lorsque le nombre d'états couplés à S par le champ est tronqué, la fonction d'onde de la particule sous l'effet du champ va non seulement se déplacer dans la boîte dans la direction du champ, mais va également se déformer à cause de la présence de la barrière : la diminution de l'extension suivant la direction du champ est une conséquence directe de la compétition entre potentiel de confinement, énergie cinétique et potentiel électrostatique.

4.6.3 Interprétation des résultats sur le splitting d'échange

Comme nous l'avons déjà souligné précédemment, le splitting d'échange mesure la différence d'étalement des fonctions d'onde suivant deux directions orthogonales.

Pour simplifier la discussion suivante, nous allons nous placer dans le cadre de champs électriques faibles :

$$eF\beta_i \ll \hbar\omega_i \quad (4.53)$$

Posons β_{xe} (resp. β_{xh}) l'extension de la fonction d'onde de l'électron (resp. du trou) suivant la direction x lorsqu'il n'y a pas application du champ électrique.

⁸ $\text{Var}_x[\Psi^2] = \int x^2 \Psi^2(x, y) dx - \left(\int x \Psi^2(x, y) dx\right)^2$

On obtient dans le cadre de (4.53), une extension suivant x de l'étalement composite $\beta_x(F)$ fonction du champ F telle que :

$$\beta_x^2(F) \approx \beta_x^2 \left[1 - \left(\left(\frac{eF\beta_{xe}}{\hbar\omega_x} \right)^2 + \left(\frac{eF\beta_{xh}}{\hbar\omega_x} \right)^2 \right) \right] \quad (4.54)$$

Cette extension diminue quadratiquement avec le champ F (voir figure 4.24 page 115)

L'extension suivant y quant à elle ne change pas car le champ n'affecte pas les extensions des particules (électron et trou) prises séparément (expression (4.51) et figure 4.24 page 115)

Désormais, effectuons la différence entre les deux variances :

$$\text{Var}_x \left[(\Psi_{fond}^{champ})^2 \right] - \text{Var}_y \left[(\Psi_{fond}^{champ})^2 \right] \approx e^{-\alpha F^2} \left[(\beta_x^2 - \beta_y^2) - \beta_x^2 \left(\left(\frac{eF\beta_{xe}}{\hbar\omega_x} \right)^2 + \left(\frac{eF\beta_{xh}}{\hbar\omega_x} \right)^2 \right) \right] \quad (4.55)$$

où $\alpha > 0$.

Ce terme fait intervenir deux contributions :

- un terme d'abaissement du recouvrement des fonctions d'onde analogue à la fonction $\mathcal{A}$ de l'équation (4.35)
- un terme de différence d'étalement des fonctions d'onde.

Annulation du splitting d'échange

Cette expression montre clairement que le splitting d'échange décroît en présence d'un champ. De plus, en présence d'ellipticité (direction d'allongement suivant x), on a $\beta_x^2 > \beta_y^2$. Aussi, le splitting d'échange créé par l'anisotropie peut être annulé par la présence du champ le long de la direction d'extension de la boîte.

Puisque $\beta_x^2 - \beta_y^2 \propto \epsilon$, le champ pour lequel on a l'annulation du splitting d'échange, varie comme (expression (4.55) et évolution figure 4.26 page 116) :

$$F \propto \sqrt{\epsilon} \quad (4.56)$$

Abaissement du splitting via la diminution du recouvrement des fonctions d'onde

Le facteur $e^{-\alpha F^2}$ de l'équation (4.55) est un terme correctif d'abaissement de la valeur du splitting causée par la diminution du recouvrement des fonctions d'onde.

4.7 Dynamique du champ

Nous avons vu précédemment que la présence d'un champ induit un splitting d'échange. Ici, nous allons nous intéresser à l'influence de ce splitting lorsque le champ extérieur a une direction qui fluctue aléatoirement (par exemple à cause de la charge et la décharge de centres perturbateurs autour de la boîte).

4.7.1 Evaluation du champ électrique créé par une charge proche de la boîte

Le calcul effectué au chapitre 2 concernant par exemple l'influence d'un électron piégé sur la paire électron-trou de la boîte est un calcul faisant intervenir la fonction d'onde de l'élément perturbateur. La présence d'une particule au voisinage de la boîte crée un champ au niveau de cette boîte. Dans la suite, on va donc remplacer l'influence de la particule étrangère à la boîte par un champ électrique $\vec{F}$. Par comparaison entre le décalage en énergie calculé par la présence d'un électron et celui d'un champ dans le plan, nous avons vu que cet électron peut créer des champs pouvant être équivalents à quelques kV/cm.

4.7.2 Champ électrique dont la direction fluctue

Boîte ronde

D'après ce qui précède, la lumière émise par les boîtes lors de la présence d'un champ $\vec{F}$ est polarisée linéairement suivant l'axe du champ ou suivant sa perpendiculaire. Dans la base des polarisations circulaires ($|+1\rangle$, $|-1\rangle$), ces polarisations s'écrivent : $|+1\rangle + e^{i.2\theta_F}|-1\rangle$ (suivant l'axe) et $|+1\rangle - e^{i.2\theta_F}|-1\rangle$ (perpendiculairement à l'axe).

Considérons une boîte pour laquelle les changements de l'environnement se font très rapidement devant le temps de vie radiatif. Aucune direction n'étant privilégiée, l'angle θ_F peut prendre aléatoirement n'importe quelle valeur entre $-\pi$ et $+\pi$.

Les changements étant très rapides, on se trouve dans le régime du *rétrécissement par le mouvement* discuté chapitre 3 : l'énergie d'émission est indépendante du changement de la configuration électrostatique. Ainsi, les photons sont émis à une énergie donnée avec une polarisation suivant un angle θ_F variant aléatoirement tel que $\langle \theta_F \rangle = 0$. On en déduit que l'effet du splitting d'échange disparaît et que les photons émis sont polarisés circulairement[54].

Boîte elliptique

Un raisonnement identique nous conduit à un résultat analogue : les photons émis sont polarisés linéairement suivant la direction d'élongation et sa perpendiculaire. L'effet sera d'autant plus fort que l'angle de polarisation se concentre plus autour des axes.

4.8 Anisotropie de polarisation

Jusqu'ici nos calculs ont permis de déterminer l'énergie de dédoublement de la transition fondamentale sans toutefois présenter de différence entre ces deux composantes, or il apparaît dans certaines expériences une anisotropie de polarisation qui dans le cas de matériaux tel que CdTe/ZnTe est attribuée au mélange des bandes de trous lourds et de trous légers[43]. Dans le cas de matériaux InAs/GaAs, ce mélange trous lourds-trous légers est considérablement affaibli à cause des contraintes qui rejettent la bande de trous légers loin en dessous de celle des trous lourds.

Dans ce qui suit, nous proposons de montrer qu'il existe une anisotropie de polarisation qui tient à la nature même de l'interaction d'échange.

4.8.1 Taux de polarisation

Nous avons vu dans ce qui précède que le splitting d'échange favorise deux directions suivant les axes $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. On définit alors le taux de polarisation T_x de ces deux directions comme suit :

$$T_x = \frac{I_{[1\bar{1}0]} - I_{[110]}}{I_{[1\bar{1}0]} + I_{[110]}} \quad (4.57)$$

où

$$I_{[1\bar{1}0]} \propto |\langle \Psi_v | \hat{\epsilon}_{[1\bar{1}0]} \cdot \vec{p} | \Psi_c \rangle|^2 \quad (4.58)$$

avec $\hat{\epsilon}_{[1\bar{1}0]}$ représentant la polarisation suivant la direction $[1\bar{1}0]$.

On voit que ce taux fait apparaître la différence de force d'oscillateur entre les deux directions de polarisation jusqu'ici négligée.

4.8.2 Prise en compte du terme $\vec{k}\vec{p}$

L'origine physique de l'interaction d'échange longue portée réside dans la prise en compte du mélange des bandes de valence et de conduction via le terme $\vec{k}\vec{p}$.

Prenons en compte cet effet sur les forces d'oscillateurs des fonctions d'onde de l'électron et du trou associé aux deux polarisations linéaires.

On obtient alors :

Pour la polarisation suivant la direction $\vec{x} = [1\bar{1}0]$:

$$\langle \Psi_v | \hat{\epsilon}_{[1\bar{1}0]} \cdot \vec{p} | \Psi_c \rangle \approx \frac{P}{\sqrt{2}} \left(\langle \Psi_S^v | \Psi_S^c \rangle + \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \frac{P^2}{2} \left[\left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (4.59)$$

Pour la polarisation suivant la direction $\vec{y} = [110]$:

$$\langle \Psi_v | \hat{\epsilon}_{[110]} \cdot \vec{p} | \Psi_c \rangle \approx \frac{P}{\sqrt{2}} \left(\langle \Psi_S^v | \Psi_S^c \rangle - \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \frac{P^2}{2} \left[\left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial x} \right\rangle \right] \right) \quad (4.60)$$

Le deuxième terme des équations (4.38) et (4.39), conséquence de la prise en compte du terme $\vec{k}\vec{p}$ dans les fonctions de Bloch (les dérivées partielles des deux expressions en sont le résultat), est à l'origine de la différence de force d'oscillateur des deux directions de polarisation.

Remarque

La prise en compte du mélange bande de conduction-bande de valence via $\vec{k}\vec{p}$ implique un changement du facteur de normalisation de la fonction de Bloch. Dans les expressions précédentes, ce changement a été négligé, mais il est pris en compte dans ce qui suit.

4.8.3 Taux de polarisation

L'expression du taux de polarisation est dans le cas où le recouvrement des fonctions d'onde est important :

$$T_x \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \frac{P^2}{2} \frac{\left[\left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial y} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial y} \right\rangle - \left\langle \frac{\partial \Psi_S^v}{\partial x} \middle| \frac{\partial \Psi_S^c}{\partial x} \right\rangle \right]}{\langle \Psi_S^v | \Psi_S^c \rangle} \quad (4.61)$$

En fonction de l'ellipticité et du rayon moyen

Dans le cas de nos fonctions d'onde (1.31) à champ nul (donc à recouvrement important), l'expression du taux de polarisation (sans correction) se simplifie et est égal à :

$$T_x \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \frac{P^2}{2} \left(\frac{1}{\beta_{ye}^2 + \beta_{yh}^2} - \frac{1}{\beta_{xe}^2 + \beta_{xh}^2} \right) \quad (4.62)$$

soit, en utilisant l'approximation de l'expression (4.34), ce taux est approximativement proportionnel à :

$$T_x \propto \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \frac{P^2}{2} \frac{\epsilon - \epsilon^2}{R_m^2} \quad ; \quad \epsilon \ll 1 \quad (4.63)$$

Le taux est donc une fonction croissante de l'ellipticité (voir figure 4.27), et une fonction décroissante (carré de l'inverse) du rayon moyen (voir figure 4.28 page ci-contre).

Remarque

Ce taux est proportionnel à l'inverse du carré du gap E_g qui dépend de la contrainte : ceci implique que plus la contrainte est importante, plus ce taux est faible.

En fonction du champ

Les figures 4.29 page suivante et 4.30 page suivante montrent l'évolution du taux de polarisation en fonction du champ appliqué suivant la direction de l'anisotropie ($[1\bar{1}0]$) (figure 4.29 page suivante) et sa perpendiculaire (figure 4.30 page suivante). Ce taux est de l'ordre de quelques % et peut être positif ou négatif suivant la direction d'application du champ.

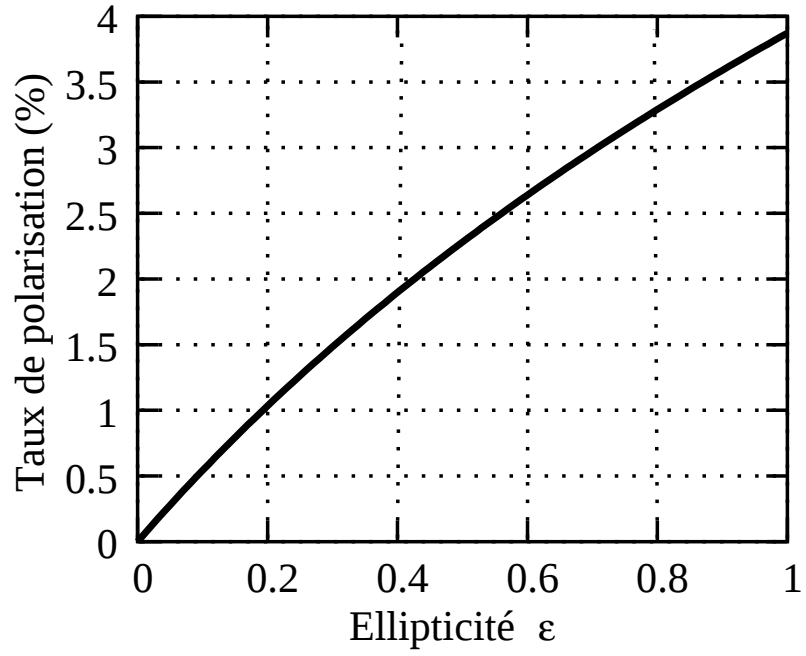


FIG. 4.27 – Evolution du taux de polarisation en fonction de l'ellipticité ϵ à rayon moyen fixé $R_m = 100 \text{ \AA}$

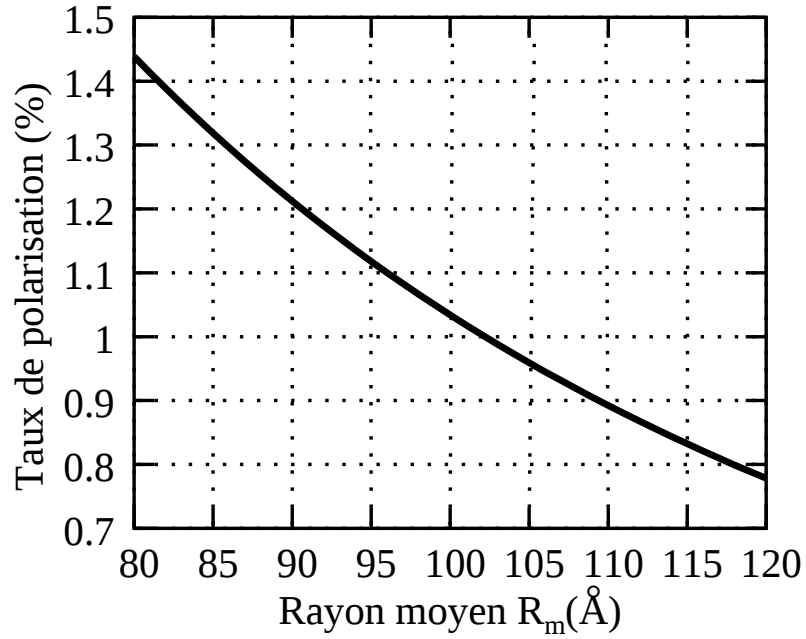


FIG. 4.28 – Evolution du taux de polarisation en fonction du rayon moyen R_m à ellipticité fixée $\epsilon = 0.2$

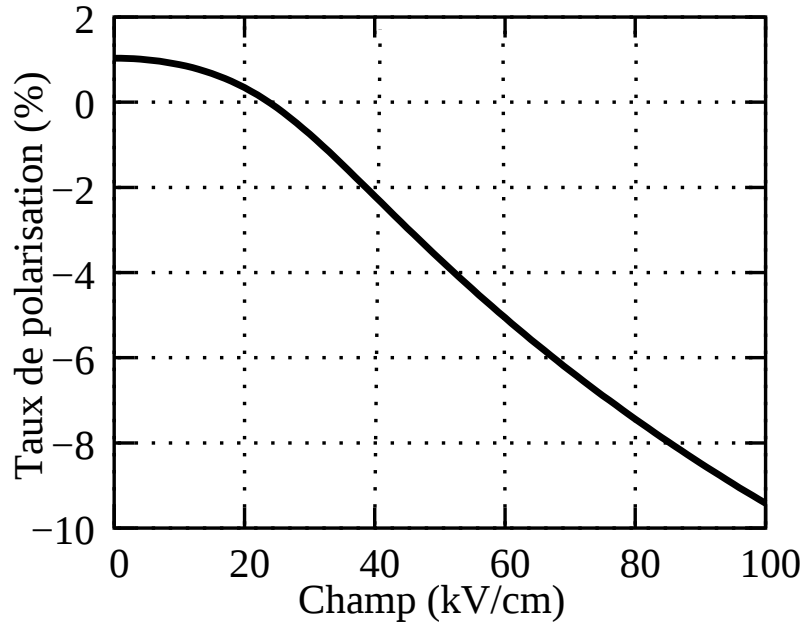


FIG. 4.29 – Evolution du taux de polarisation en fonction du champ, le champ étant placé le long de la direction $[1\bar{1}0]$ ($R_m = 100 \text{ \AA}$, $\epsilon = 0.2$)

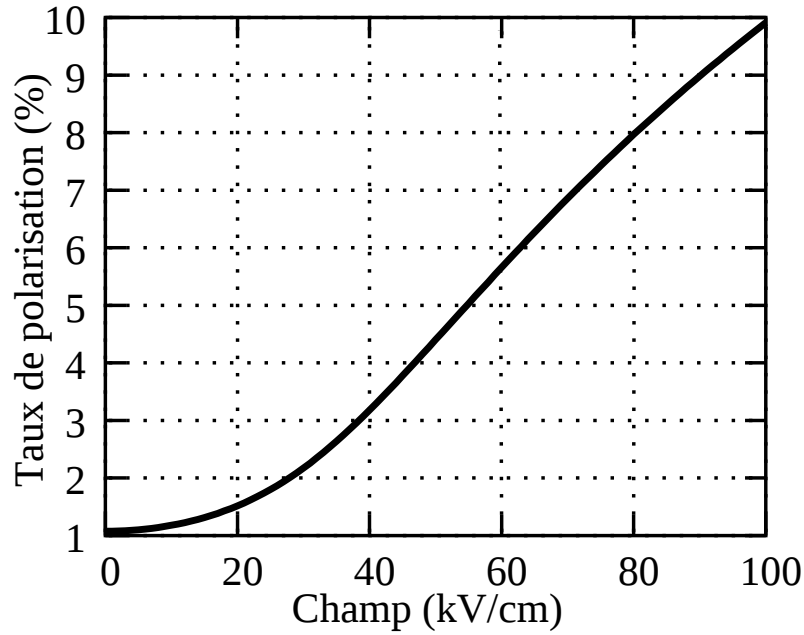


FIG. 4.30 – Evolution du taux de polarisation en fonction du champ lorsque le champ est placé le long de la direction $[110]$

4.9 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'influence de différents facteurs sur la structure fine d'un exciton confiné : la réduction de la symétrie du potentiel 'ressenti' par la fonction d'onde de l'exciton lève la dégénérescence des excitons lourds optiquement actifs qui se recombinent en polarisation linéaire suivant les axes principaux du potentiel effectif.

Nous avons mis en évidence la possibilité de l'annulation du splitting d'échange en appliquant un champ 'réducteur' d'asymétrie suivant la direction d'allongement des fonctions d'onde (anisotropie de forme) : le rôle de la barrière confinante étant déterminante.

Enfin, nous avons montré qu'une anisotropie de polarisation existe même sans la prise en compte du mélange lourd-léger.

Complément du chapitre 4. : effet piézo-électrique

Certains cristaux lorsqu'ils sont soumis à une pression dans des directions particulières voient apparaître des charges positives et négatives sur certaines portions de leur surface : le champ de contrainte subit par ces matériaux conduit à l'apparition du phénomène piezo-électrique. L'apparition du champ piezo-électrique peut être représenté par un modèle ionique simple faisant intervenir le déplacement, sous l'effet de la contrainte, des barycentres des charges positives et négatives à l'intérieur des cubes formant la maille cristalline. Il apparaît alors à l'intérieur de chaque tétraèdre de la maille un dipôle élémentaire orienté selon la direction de la contrainte. Ce champ piézo-électrique va alors constituer un gradient de potentiel pour les porteurs chargés de la boîte.

Les boîtes quantiques auto-organisées InAs/GaAs sont fabriquées via un mécanisme de désaccord de maille et sont par conséquent toujours contraintes. Les matériaux les constituant étant piézo-électriques, la prise en compte de l'effet piezo-électrique dans les calculs rend compte de la réalité : il peut être inclut (comme nous allons le voir par la suite) en additionnant un potentiel électrostatique à l'hamiltonien.

Nous allons dans ce complément traiter le cas de l'impact de l'effet piézo-électrique sur les propriétés électroniques et optiques des boîtes à partir d'un modèle simple (voir Annexe E.) sur la base des 25 paires électron-trou.

Dans la suite, les potentiels de confinement de la boîte sont pour les électrons : $\Delta E_c = 450 \text{ meV}$ et pour les trous : $\Delta E_v = 200 \text{ meV}$.

4.10 Modélisation de l'effet piézo-électrique

4.10.1 Tenseur piezo-électrique

La valeur de la polarisation d'origine piézo-électrique peut être quantifiée à partir de la valeur de la contrainte présente dans la couche. La piezo-électricité est alors représentée par un tenseur de rang trois e_{ijk} qui relie les déformations ϵ à la polarisation P dans un cristal :

$$P_i = e_{ijk}\epsilon_{jk} \quad (4.64)$$

Matériau	InAs	GaAs
e_{14} (C/m ²)	0.045	0.16

TAB. 4.1 – Valeur des coefficients piézo-électriques

L'écriture est celle de la convention usuelle de sommation sur les indices répétés.

Ce tenseur possède plusieurs éléments identiques ou nuls pour des raison de symétrie dans la maille cristalline. Après simplification, seules subsistent 3 composantes non nulles identiques appelées e_{14} . Dans un cristal cubique, en prenant comme repère les directions cristallographiques [100], [010], [001], on obtient[58] :

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \epsilon_4 \\ \epsilon_5 \\ \epsilon_6 \end{pmatrix} \quad (4.65)$$

où $\epsilon_1 = \epsilon_{xx}$, $\epsilon_2 = \epsilon_{yy}$, $\epsilon_3 = \epsilon_{zz}$, $\epsilon_4 = 2\epsilon_{yz}$, $\epsilon_5 = 2\epsilon_{xz}$ et $\epsilon_6 = 2\epsilon_{xy}$.

4.10.2 Potentiel créé par la polarisation

La densité de polarisation (dans la base $\vec{x} = [1\bar{1}0]/\sqrt{2}$, $\vec{y} = [110]/\sqrt{2}$, $\vec{z} = [001]$) est donnée dans les matériaux à structure Zinc-Blende par[9] :

$$\begin{aligned} P_x &= -2e_{14}\epsilon_{zx} \\ P_y &= 2e_{14}\epsilon_{zy} \\ P_z &= e_{14}(\epsilon_{yy} - \epsilon_{xx}) \end{aligned} \quad (4.66)$$

e_{14} étant la constante piézo-électrique et les ϵ_{ij} les termes du tenseur de déformation ϵ .

Le potentiel piezo-électrique est alors donné par :

$$V_p(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \int \frac{\vec{P}(\vec{r}') \cdot (\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d^3\vec{r}' \quad (4.67)$$

La valeur de ϵ_{zx} (resp. ϵ_{zy}) étant quasi indépendante de la coordonnée y (resp. x), on peut écrire le champ de polarisation sous la forme :

$$P_x = -\mathcal{F}(\rho) \cos(\theta) \quad (4.68)$$

$$P_y = \mathcal{F}(\rho) \sin(\theta) \quad (4.69)$$

$$P_z = 0 \quad (4.70)$$

où $\mathcal{F}$ est une fonction dépendant de ρ :

$$\mathcal{F}(\rho) = 2e_{14}(e^{1/2}\sqrt{2\alpha}\rho\exp(-\alpha\rho^2))\epsilon_z^{max} \quad (4.71)$$

Cette fonction atteint sa valeur maximale $2e_{14}\epsilon_z^{max}$ en $\rho = \frac{1}{2\alpha}$.

Pour que cette valeur soit atteinte en bord de boîte, le paramètre α devient une fonction dépendant de z telle que pour chaque plan horizontal :

$$\alpha(z) = \frac{1}{2(R_m^2 - \left(\frac{z}{\tan(\theta_{cone})}\right)^2)} \quad (4.72)$$

Le potentiel déduit à l'aide de cette fonction est alors (voir Annexe E.) :

$$V_p(\vec{r}) = -\frac{1}{\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\cos(2\theta_\rho)}{\rho^2} \int_0^\rho d\rho' \rho'^2 \mathcal{F}(\rho') H(\rho - \rho') \quad (4.73)$$

Il va y'avoir couplage des états S aux états D (par la présence du $\cos(2\theta_\rho)$), comme l'effet de l'anisotropie.

Potentiel piézo-électrique en bord de boîte

Au niveau du bas de la boîte, le potentiel piézo-électrique en bord de boîte vaut :

$$V_p(R, \theta) = -\frac{2e_{14}e^{1/2}\epsilon_z^{max}}{\epsilon_0\epsilon_r} 2\left(1 - \frac{3}{2}e^{-1/2}\right) R \cos(2\theta) \quad (4.74)$$

d'où

$$V_p(R, \theta)(\text{mV}) = -5.3775 e_{14}(\text{C.m}^{-2}) \epsilon_z(\%) R(\text{\AA}) \cos(2\theta) \quad (4.75)$$

qui donne la valeur en mV (au bord de la boîte) du champ piézo-électrique lorsque e_{14} est exprimé en C.m^{-2} , ϵ_z en % et le rayon R en $\text{\AA}$

Cela nous permet aussi de constater que la valeur du potentiel en bord de boîte dépend linéairement de la taille moyenne de la boîte ($\propto R$)[11].

4.10.3 Influence sur la forme de la fonction d'onde de l'état fondamental

Le potentiel piézo-électrique a un impact différent sur la forme de la fonction d'onde suivant la nature du porteur de charge pris en considération puisqu'il est d'origine électrostatique. La forme du potentiel conduit à ce que la fonction d'onde des trous s'allonge suivant la direction $\vec{x} = [1\bar{1}0]$ et à ce que celle des électrons s'allonge suivant la direction $\vec{y} = [110]$ [11]

4.11 Interaction d'échange

Dans les sections précédentes, nous avons vu que le splitting d'échange résultait de la différence d'extension des étalements composites suivant deux directions perpendiculaires. Ici, les effets d'étalements sont opposés pour les électrons et pour les trous compte tenu de ce qui a été dit précédemment.

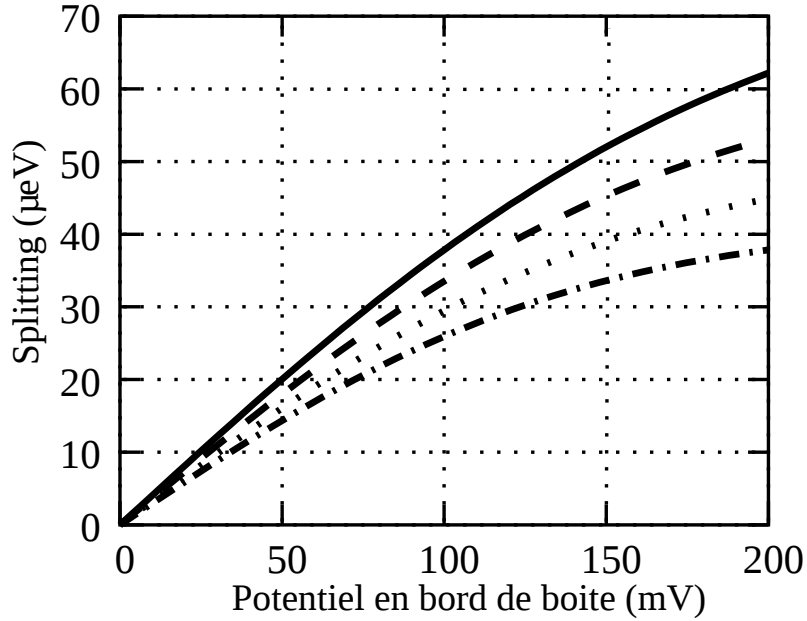


FIG. 4.31 – Evolution du splitting d'échange en fonction de la valeur du potentiel en bord de boîte pour différentes tailles de boîtes ronde : $R = 100 \text{ Å}$ en trait plein, $R = 110 \text{ Å}$ en tirets, $R = 120 \text{ Å}$ en pointillés, $R = 130 \text{ Å}$ en tiret-points. Nous avons pris en compte le potentiel coulombien dans ces calculs

Ce comportement implique d'une part que l'exciton 'lourd' se recombine suivant les polarisations linéaires π_x et π_y et d'autre part que la valeur du splitting d'échange est une compétition entre les sensibilités de chacun des porteurs de charge par rapport à l'effet piézo-électrique. La figure 4.31 montre l'évolution de cette valeur en fonction de la valeur du potentiel piézo-électrique en bord de boîte (expression (4.75)) pour différentes tailles de boîte.

Conclusion générale

Dans cette thèse consacrée à l'étude des états électroniques des boîtes quantiques, nous nous sommes intéressés à l'effet de différents facteurs sur leurs propriétés optiques (élargissement des transitions et structure fine).

Tout d'abord, nous avons vu que l'image d'une boîte exhibant un spectre avec des transitions discrètes fines seulement élargies radiativement est entachée par le fait qu'elles résident dans un environnement électrostatique fluctuant dans le temps : une excitation hors résonance par exemple, permet de créer des porteurs de charges dans l'environnement qui vont interagir avec la paire électron-trou confinée de la boîte via le potentiel coulombien ; ces perturbateurs vont alors créer des microchamps qui peuvent être à l'origine de l'élargissement des transitions et ainsi d'une perte de cohérence.

L'étude de ces perturbations électrodynamiques nous a permis de distinguer deux cas importants dans l'influence de ces microchamps :

- d'une part, il peut y avoir un décalage en énergie de la transition sans induire un quelconque déphasage, c'est le cas des perturbateurs 'lents' dont les fluctuations sont extrêmement lentes par rapport au temps de vie radiatif de l'exciton de la boîte,
- d'autre part, il peut y avoir un élargissement homogène résultant de fluctuations 'rapides' dont la caractéristique principale est un temps de changement de configuration électrostatique τ_0 rapide 'par rapport' au décalage en énergie moyen $\hbar\Delta$ subit par la boîte ($\Delta\tau_0 \ll 1$).

Ensuite, l'approche masse effective à une bande et le travail en perturbation sur la base des états déterminés à partir d'un modèle simple permet la simulation de l'impact des effets structurels et des effets non-paraboliques sur les propriétés électroniques et optiques de ces nanostructures (en particulier sur la structure fine).

Ce type de calculs possède plusieurs limitations par rapport à des calculs plus complexes (VFF, pseudo-potentiel, méthode $\vec{k}.\vec{p}$ à huit bande, ...) :

- on suppose que les fonctions de Bloch sont les mêmes à travers toute la structure sans se soucier du matériau et des variations de la contrainte (on suppose que l'effet des contraintes est homogène),
 - les calculs via $\vec{k}.\vec{p}$ sont traités en perturbation et restreints au voisinage immédiat du centre Γ de la zone de Brillouin,
 - la base de travail des états de la boîte est restreinte à un nombre limité d'états.
- Mais il possède aussi plusieurs atouts :
- il conduit à une compréhension simple des observations expérimentales,

-
- il permet de voir l'impact séparé des différents éléments sur les propriétés optiques des boîtes.

C'est dans ce cadre que nous avons étudié l'influence de l'interaction d'échange longue portée sur la structure fine de l'exciton : son effet combiné à l'anisotropie de forme ou bien à la présence d'un champ électrique, conduit à un dédoublement du niveau radiatif de l'exciton lourd sous la forme de deux raies polarisées linéairement suivant deux axes perpendiculaires. La superposition des deux effets peut conduire à l'annulation de ce dédoublement par l'application du champ électrique le long du grand axe de l'anisotropie. De plus, nous avons vu qu'une différence de force d'oscillateur résulte de la nature même de l'interaction d'échange par la prise en compte du terme $\vec{k} \cdot \vec{p}$ dans le calcul de la fonction enveloppe des deux transitions issues de l'interaction d'échange.

Annexe A. : éléments de matrice d'interaction coulombienne

Calculons l'élément de matrice d'interaction coulombienne sur la base des paires électrons-trous définit au chapitre 1

$$\langle \Psi_{X_{e1}} \Psi_{Y_{h1}} | V_{coul} | \Psi_{X_{e2}} \Psi_{Y_{h2}} \rangle \quad (\text{A.1})$$

avec

$$\Psi_{A_{a\alpha}} = N_{A_{a\alpha}} \cdot \rho_a^{n_\alpha^a} \exp\left(-\frac{\rho_a^2}{2\beta_{a\alpha}^2}\right) \exp\left(-\frac{(z - z_{0a\alpha})^2}{2\sigma_{za\alpha}^2}\right) F_{trigo}(n_\alpha^a \theta) \quad (\text{A.2})$$

où

$$F_{trigo}(n_\alpha^a \theta) = \begin{cases} \cos(n_\alpha^a \theta) & \text{pour un état } \Psi_S, \Psi_{P_x} \text{ et } \Psi_{D_x} \\ \sin(n_\alpha^a \theta) & \text{pour un état } \Psi_{P_y} \text{ et } \Psi_{D_y} \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

où

$$n_\alpha^a = \begin{cases} 0 & \text{pour un état } \Psi_S \\ 1 & \text{pour un état } \Psi_P \\ 2 & \text{pour un état } \Psi_D \end{cases} \quad (\text{A.4})$$

La détermination du potentiel coulombien dans l'espace réciproque (3D) donne :

$$V_{coul}(\vec{r}) = -\frac{1}{2\pi^2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int d\vec{q} \frac{e^{i\vec{q}\vec{r}}}{q^2} \quad (\text{A.5})$$

soit :

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{X_e^1} \Psi_{Y_h^1} | V_{coul} | \Psi_{X_e^2} \Psi_{Y_h^2} \rangle &\propto \int d\theta q_\perp dq_\perp \\ &\int \rho_e d\theta_e d\rho_e \rho_e^{n_1^e + n_2^e} \exp(-\alpha_{e1e2} \rho_e^2) e^{i\vec{q}_\perp \cdot \rho_e} F_{trigo}(n_1^e \theta) F_{trigo}(n_2^e \theta) \\ &\int \rho_h d\theta_h d\rho_h \rho_h^{n_1^h + n_2^h} \exp(-\alpha_{h1h2} \rho_h^2) e^{-i\vec{q}_\perp \cdot \rho_h} F_{trigo}(n_1^h \theta) F_{trigo}(n_2^h \theta) \\ &\mathcal{F}(z_e, z_h, q_\perp) \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

$$\text{où } \alpha_{a1a2} = \frac{1}{2\beta_{a1}^2} + \frac{1}{2\beta_{a2}^2}$$

et

$$\mathcal{F}(z_e, z_h, q_\perp) = \int dq_z \frac{\int dz_e \exp(-\frac{(z-z_{0e1})^2}{2\sigma_{ze1}^2}) \exp(-\frac{(z-z_{0e2})^2}{2\sigma_{ze2}^2}) \int dz_h \exp(-\frac{(z-z_{0h1})^2}{2\sigma_{zh1}^2}) \exp(-\frac{(z-z_{0h2})^2}{2\sigma_{zh2}^2}) e^{iq_z z}}{q_z^2 + q_\perp^2} \quad (\text{A.7})$$

L'intégration sur q_z donne :

$$\begin{aligned} \mathcal{F}(z_e, z_h, q_\perp) &= \frac{\pi}{q_\perp} \int dz_e \exp(-\frac{(z-z_{0e1})^2}{2\sigma_{ze1}^2}) \exp(-\frac{(z-z_{0e2})^2}{2\sigma_{ze2}^2}) \\ &\quad \int dz_h \exp(-\frac{(z-z_{0h1})^2}{2\sigma_{zh1}^2}) \exp(-\frac{(z-z_{0h2})^2}{2\sigma_{zh2}^2}) e^{iq_z z} e^{-q_\perp |z_e - z_h|} \quad (\text{A.8}) \\ &= \frac{\pi}{q_\perp} \mathcal{I}_{z_e, z_h}(q_\perp) \end{aligned}$$

Les produits $F_{trigo}(n_1^e \theta) F_{trigo}(n_2^e \theta)$ et $F_{trigo}(n_1^h \theta) F_{trigo}(n_2^h \theta)$ donne des combinaisons de fonctions sinus et cosinus.

$$F_{trigo}(n_1^a \theta) F_{trigo}(n_2^a \theta) = \frac{1}{2} [\pm F_{trigo}((n_1^a + n_2^a) \theta) + F_{trigo}((n_1^a - n_2^a) \theta)] \quad (\text{A.9})$$

L'intégration sur θ_e donne :

$$\begin{aligned} &\int \rho_e d\theta_e d\rho_e \rho_e^{n_1^e + n_2^e} \exp(-\alpha_{e1e2} \rho_e^2) e^{iq_\perp \cdot \rho_e} F_{trigo}(n_1^e \theta) F_{trigo}(n_2^e \theta) \\ &= \int \rho_e^{n_1^e + n_2^e + 1} \exp(-\alpha_{e1e2} \rho_e^2) \\ &\quad \frac{1}{2} [2\pi(i)^{|n_1^e - n_2^e|} J_{|n_1^e - n_2^e|}(q_\perp \rho_e) F_{trigo}((n_1^e - n_2^e) \theta_q) \\ &\quad \pm 2\pi(i)^{n_1^e + n_2^e} J_{n_1^e + n_2^e}(q_\perp \rho_e) F_{trigo}((n_1^e + n_2^e) \theta_q)] \quad (\text{A.10}) \end{aligned}$$

de même sur θ_h sauf que l'on prend le complexe conjugué.

Ainsi, on voit apparaître un produit de fonctions trigonométriques en θ_q :

$$[\pm F_{trigo}((n_1^e + n_2^e) \theta_q) + F_{trigo}((n_1^e - n_2^e) \theta_q)] [\pm F_{trigo}((n_1^h + n_2^h) \theta_q) F_{trigo}((n_1^h - n_2^h) \theta_q)] \quad (\text{A.11})$$

Ce produit conduit à l'obtention de la somme de 8 fonctions trigonométriques.

L'intégration sur θ_q est différente de 0 si et seulement si parmi les fonctions obtenues se trouve la fonction constante.

Le potentiel Coulombien va alors mélanger les états se trouvant dans la même collection :

$$\begin{aligned} \text{I. } &\{ |\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}} \Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}} \Psi_{D_{y_h}}\rangle; \\ &\quad |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}} \Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}} \Psi_{D_{x_h}}\rangle \\ &\quad |\Psi_{S_e} \Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{S_e} \Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}} \Psi_{S_h}\rangle \} \\ \text{II. } &\{ |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle \} \\ \text{III. } &\{ |\Psi_{S_e} \Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{D_{y_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{D_{x_h}}\rangle; |\Psi_{D_{x_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle; |\Psi_{D_{y_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; \} \end{aligned}$$

Annexe B. : évolution stochastique de la matrice densité en présence d'un piège

Le calcul suivant a été inspiré de la référence[36]

Définition des données stochastiques

L'élément aléatoire est introduit via $V(t)$ dans l'hamiltonien dépendant du temps

$$H = H_0 + V(t) \quad (\text{B.1})$$

On suppose que les changements de $V(t)$ sont instantanés et que le temps de vie de chacun des états $\uparrow$ et $\downarrow$ sont caractérisés par les temps $\tau_{\uparrow}$ et $\tau_{\downarrow}$ durant lesquels la valeur de $V(t)$ est constante avec les distributions

$$\mathcal{W}_{\alpha}(t) = \frac{1}{\tau_{\alpha}} e^{-\frac{t}{\tau_{\alpha}}} \quad (\text{B.2})$$

caractérisant la densité de probabilité d'être dans la configuration $\alpha = \uparrow$ ou $\downarrow$ considérée après une durée t .

Le temps de vie moyen d'être dans l'une ou l'autre des configurations est donné par :

$$\mathcal{P}_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\frac{1}{\tau_{\downarrow,\uparrow}}}{\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}} \quad (\text{B.3})$$

Equation d'évolution de la matrice densité

L'évolution moyenne de la matrice densité est alors un problème purement statistique pour lequel on va introduire son opérateur d'évolution unitaire $\mathbf{U}$

$$\rho(t) = U(t, t') \rho(t') U^{-1}(t, t') \quad (\text{B.4})$$

où

$$i\hbar \frac{\partial U}{\partial t} = HU \quad (\text{B.5})$$

Lorsque le potentiel Φ est "branché" (c'est-à-dire que le piège est occupé), $U(\Delta, t, t')$ représente alors l'opérateur d'évolution associé (il correspond à une accumulation de phase $\Delta(t - t')$) et $U(0, t, t')$ représente l'opérateur d'évolution quand Φ n'est pas "branché".

Quand il se déroule k changements dans l'intervalle de temps $[0, t]$, la matrice densité résultante est

$$\bar{\rho}(t) = U(\Delta, t, t_k) \dots U(\Delta, t_2, t_1) U(0, t_1, 0) \rho(0) U^{-1}(0, t_1, 0) U^{-1}(\Delta, t_2, t_1) \dots U^{-1}(\Delta, t, t_k) \quad (\text{B.6})$$

Soit $\rho_{\uparrow/\uparrow}$ la partie de la matrice densité caractérisant son évolution lorsque l'état initial est $\uparrow$ et son état final l'est aussi (il faut lire la notation $\uparrow / \uparrow$, ' $\uparrow$ ' sachant ' $\uparrow$ '). De la même façon, on définit $\rho_{\uparrow/\downarrow}$, $\rho_{\downarrow/\downarrow}$ et $\rho_{\downarrow/\uparrow}$.

On obtient le système des quatres équations couplées :

$$\bar{\rho}_{\uparrow/\uparrow}(\tau) = \mathcal{P}_{\uparrow} e^{-\frac{t}{\tau_{\uparrow}}} U_{\uparrow}(\tau, 0) \rho(0) U_{\uparrow}(\tau, 0)^{-1} + \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\uparrow}}}}{\tau_{\downarrow}} U_{\uparrow}(\tau, t) \bar{\rho}_{\downarrow/\uparrow}(t) U_{\uparrow}(\tau, t)^{-1} \quad (\text{B.7})$$

$$\bar{\rho}_{\downarrow/\downarrow}(\tau) = \mathcal{P}_{\downarrow} e^{-\frac{t}{\tau_{\downarrow}}} U_{\downarrow}(\tau, 0) \rho(0) U_{\downarrow}(\tau, 0)^{-1} + \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\downarrow}}}}{\tau_{\uparrow}} U_{\downarrow}(\tau, t) \bar{\rho}_{\uparrow/\downarrow}(t) U_{\downarrow}(\tau, t)^{-1} \quad (\text{B.8})$$

$$\bar{\rho}_{\uparrow/\downarrow}(\tau) = \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\uparrow}}}}{\tau_{\downarrow}} U_{\uparrow}(\tau, t) \bar{\rho}_{\downarrow/\downarrow}(t) U_{\uparrow}(\tau, t)^{-1} \quad (\text{B.9})$$

$$\bar{\rho}_{\downarrow/\uparrow}(\tau) = \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\downarrow}}}}{\tau_{\uparrow}} U_{\downarrow}(\tau, t) \bar{\rho}_{\uparrow/\uparrow}(t) U_{\downarrow}(\tau, t)^{-1} \quad (\text{B.10})$$

Maintenant, on effectue une somme des états initiaux pour obtenir l'équation d'évolution de la matrice densité lorsque le piège est vide ($\bar{\rho}_{\uparrow}(t)$) ou occupé ($\bar{\rho}_{\downarrow}(t)$) à l'instant t :

$$\bar{\rho}_{\uparrow}(t) = \bar{\rho}_{\uparrow/\uparrow}(t) + \bar{\rho}_{\uparrow/\downarrow}(t) \quad (\text{B.11})$$

$$\bar{\rho}_{\downarrow}(t) = \bar{\rho}_{\downarrow/\downarrow}(t) + \bar{\rho}_{\downarrow/\uparrow}(t) \quad (\text{B.12})$$

On obtient alors le système d'équation suivant :

$$\rho_{\uparrow}(\tau) = \mathcal{P}_{\uparrow} e^{-\frac{\tau}{\tau_{\uparrow}}} U_{\uparrow}(\tau, 0) \rho(0) U_{\uparrow}^{-1}(\tau, 0) + \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\uparrow}}}}{\tau_{\downarrow}} U_{\uparrow}(\tau, t) \rho_{\downarrow}(t) U_{\uparrow}^{-1}(\tau, t) \quad (\text{B.13})$$

$$\rho_{\downarrow}(\tau) = \mathcal{P}_{\downarrow} e^{-\frac{\tau}{\tau_{\downarrow}}} U_{\downarrow}(\tau, 0) \rho(0) U_{\downarrow}^{-1}(\tau, 0) + \int_0^{\tau} dt \frac{e^{-\frac{\tau-t}{\tau_{\downarrow}}}}{\tau_{\uparrow}} U_{\downarrow}(\tau, t) \rho_{\uparrow}(t) U_{\downarrow}^{-1}(\tau, t) \quad (\text{B.14})$$

Equations de Bloch optique en environnement dichotomique fluctuant

En dérivant les équation précédentes, on obtient :

$$\dot{\bar{\rho}}_{\uparrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\uparrow}, \bar{\rho}_{\uparrow}(\tau)] \quad (\text{B.15})$$

$$\dot{\bar{\rho}}_{\downarrow}(\tau) = -\frac{1}{\tau_{\downarrow}}\bar{\rho}_{\downarrow}(\tau) + \frac{1}{\tau_{\uparrow}}\bar{\rho}_{\uparrow}(\tau) + \frac{1}{i\hbar}[H_{\downarrow}, \bar{\rho}_{\downarrow}(\tau)] \quad (\text{B.16})$$

Annexe C. : interaction d'échange des excitons dans les semiconducteurs

Plaçons nous dans la base $|iS \uparrow \rangle, |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle, |iS \downarrow \rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$
 La matrice $\vec{k}\vec{p}$ pour les états massifs à $\vec{k} \neq \vec{0}$ s'écrit alors :

$$\mathcal{H}_{\vec{k}\vec{p}} = \begin{pmatrix} \mathcal{H} & 0 \\ 0 & \mathcal{H} \end{pmatrix} \quad (\text{C.1})$$

où $\mathcal{H}$ est la matrice 2×2

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} & ip\hbar k_+ \\ ip\hbar k_- & -E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} \end{pmatrix} \quad (\text{C.2})$$

un calcul en perturbation nous permet alors d'écrire :

$$u_c(\vec{k}) \approx u_c(0) - \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k}\vec{p}}{E_g} u_v(0) \quad (\text{C.3})$$

$$u_v(\vec{k}) \approx u_v(0) + \frac{i\hbar}{m_0} \frac{\vec{k}\vec{p}}{E_g} u_c(0) \quad (\text{C.4})$$

où E_g représente l'énergie de gap du matériaux d'InAs.

L'état de la bande de conduction est alors :

$$\Phi_c \approx \Psi_{n_e} u_c(0) - \frac{i\hbar}{m_0 E_g} (\vec{p} \cdot \vec{\nabla} \Psi_{n_e}) u_v(0) \quad (\text{C.5})$$

et l'état de la bande de valence est :

$$\Phi_v \approx \Psi_{n_h} u_v(0) + \frac{i\hbar}{m_0 E_g} (\vec{p} \cdot \vec{\nabla} \Psi_{n_h}) u_c(0) \quad (\text{C.6})$$

Calculons le terme d'échange λ_{ech} :

$$\lambda_{ech} = \langle \Phi_c(\vec{r}_1) \Phi_{v'}(\vec{r}_2) | V_{coul} | \Phi_v(\vec{r}_1) \Phi_{c'}(\vec{r}_2) \rangle \quad (\text{C.7})$$

En remplaçant (4.88) et (4.89) dans (4.90) et en prenant en compte l'orthogonalité des fonctions de Bloch, on obtient :

$$\begin{aligned}
 \lambda_{ech}^{LR} \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 & \left[\langle \Psi_{n_e}(\vec{r}_1) \Psi_{n_h}(\vec{r}_2) | V_{coul} | (\vec{p}_{c_0 v_0} \cdot \vec{\nabla}_1 \Psi_{n_h}(\vec{r}_1)) (\vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot \vec{\nabla}_2 \Psi_{n_e}(\vec{r}_2)) \rangle \right. \\
 & + \langle \Psi_{n_e}(\vec{r}_1) (\vec{p}_{c'_0 v'_0} \cdot \vec{\nabla}_2 \Psi_{n_h}(\vec{r}_2)) | V_{coul} | (\vec{p}_{c_0 v_0} \cdot \vec{\nabla}_1 \Psi_{n_h}(\vec{r}_1)) \Psi_{n_e}(\vec{r}_2) \rangle \\
 & + \langle (\vec{p}_{v_0 c_0} \cdot \vec{\nabla}_1 \Psi_{n_e}(\vec{r}_1)) \Psi_{n_h}(\vec{r}_2) | V_{coul} | \Psi_{n_h}(\vec{r}_1) (\vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot \vec{\nabla}_2 \Psi_{n_e}(\vec{r}_2)) \rangle \\
 & \left. + \langle (\vec{p}_{v_0 c_0} \cdot \vec{\nabla}_1 \Psi_{n_e}(\vec{r}_1)) (\vec{p}_{c'_0 v'_0} \cdot \vec{\nabla}_2 \Psi_{n_h}(\vec{r}_2)) | V_{coul} | \Psi_{n_h}(\vec{r}_1) \Psi_{n_e}(\vec{r}_2) \rangle \right] \quad (C.8)
 \end{aligned}$$

On remarque que l'origine physique de l'interaction d'échange longue portée réside dans le mélange de la bande de conduction et celle de valence, c'est à dire si les électrons et les trous ne sont pas respectivement purement s et p .

En developpant, on obtient :

$$\lambda_{ech}^{LR} \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \vec{p}_{c_0 v_0} \cdot (\vec{\nabla}_1 (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}_1) \Psi_{n_h}(\vec{r}_1))) V_{coul} \vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot (\vec{\nabla}_1 (\Psi_{n_h}^*(\vec{r}_2) \Psi_{n_e}(\vec{r}_2))) \quad (C.9)$$

la détermination du potentiel de coulomb dans l'espace réciproque donne :

$$\begin{aligned}
 \lambda_{ech}^{LR} \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \int d\vec{q} V_{\vec{q}} & \left[\int d\vec{r}_1 \vec{p}_{c_0 v_0} \cdot (\vec{\nabla}_1 (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}_1) \Psi_{n_h}(\vec{r}_1))) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_1} \right] \\
 & \left[\int d\vec{r}_2 \vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot (\vec{\nabla}_1 (\Psi_{n_h}^*(\vec{r}_2) \Psi_{n_e}(\vec{r}_2))) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_2} \right] \quad (C.10)
 \end{aligned}$$

En utilisant (formule d'intégration par partie) :

$$\vec{\nabla}(\Psi_{n_e} \Psi_{n_h}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} = \vec{\nabla}(\Psi_{n_e} \Psi_{n_h} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}) - i\vec{q} \Psi_{n_e} \Psi_{n_h} \quad (C.11)$$

On obtient :

$$\begin{aligned}
 \lambda_{ech} \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \int d\vec{q} & \left[-i\vec{p}_{c_0 v_0} \cdot \vec{q} \int d\vec{r}_1 (\vec{\nabla}_1 (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}_1) \Psi_{n_h}(\vec{r}_1))) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_1} \right] \\
 & \left[i\vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot \vec{q} \int d\vec{r}_2 (\vec{\nabla}_2 (\Psi_{n_e}^*(\vec{r}_2) \Psi_{n_h}(\vec{r}_2))) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_2} \right] \quad (C.12)
 \end{aligned}$$

puisque les fonctions d'onde s'annulent à l'infini.

On a alors :

$$\lambda_{ech} \approx \left(\frac{\hbar}{m_0 E_g} \right)^2 \int d\vec{q} (\vec{p}_{c_0 v_0} \cdot \vec{q}) (\vec{p}_{v'_0 c'_0} \cdot \vec{q}) \left| \int d\vec{r} ((\Psi_{n_e}^*(\vec{r}) \Psi_{n_h}(\vec{r}))) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 \quad (C.13)$$

Annexe D. : splitting d'échange sur une base réduite

Evolution en fonction de l'ellipticité

Dans la base $\{|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle; |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle\}$, la présence du potentiel de coulomb va donner pour l'état fondamental :

$$|\Psi_{fond}\rangle = a|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle + b(|\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle + |\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle) \quad (D.1)$$

puisque les rôles joués par $|\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle$ et $|\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle$ sont les mêmes.

Prenons en compte l'anisotropie qui va différencier les contributions des états P dans l'état fondamental :

$$|\Psi_{fond}\rangle = \alpha|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle + \beta|\Psi_{P_{x_e}} \Psi_{P_{x_h}}\rangle + \gamma|\Psi_{P_{y_e}} \Psi_{P_{y_h}}\rangle \quad (D.2)$$

qu'on peut réécrire (avec les notations de l'équation (1.) du chapitre 1. :

$$|\Psi_{fond}\rangle = \alpha|\Psi_{S_e} \Psi_{S_h}\rangle + \frac{\beta + \gamma}{2}|\Psi_{P_e} \Psi_{P_h}\rangle + \frac{\beta - \gamma}{2}\cos(2\theta)|\Psi_{P_e} \Psi_{P_h}\rangle \quad (D.3)$$

L'intégration sur $\vec{r}$ de $e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}$ de $\Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r})$ nous donne :

$$\int d\vec{r} \Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} = \alpha \langle \Psi_{S_e} | \tilde{J}_0 | \Psi_{S_h} \rangle + \frac{\beta + \gamma}{2} \langle \Psi_{P_e} | \tilde{J}_0 | \Psi_{P_h} \rangle - \frac{\beta - \gamma}{2} \cos(2\theta_q) \langle \Psi_{P_e} | \tilde{J}_2 | \Psi_{P_h} \rangle \quad (D.4)$$

où $\langle \Psi_{X_e} | \tilde{J}_n | \Psi_{Y_h} \rangle = 2\pi \int_0^\infty \rho d\rho \int_{-\infty}^{+\infty} dz \Psi_{X_e}(\rho, z) \Psi_{Y_h}(\rho, z) J_n(q_\perp) e^{iq_z z}$, J_n représente les fonctions de bessel d'ordre n

β et γ sont proportionnels à ϵ : $\beta = b\epsilon$ et $\gamma = c\epsilon$

On a alors :

$$\int_0^{2\pi} d\theta_q e^{2i\theta_q} \left| \int d\vec{r} \Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 = A_0 \epsilon - A_1 \epsilon^2 \quad (D.5)$$

où $A_0 = \frac{\pi}{2}(b-c)\alpha \langle \Psi_{S_e} | \tilde{J}_0 | \Psi_{S_h} \rangle \langle \Psi_{P_e} | \tilde{J}_2 | \Psi_{P_h} \rangle$, $A_1 = \frac{\pi}{4}(b^2 - c^2) \langle \Psi_{P_e} | \tilde{J}_0 | \Psi_{P_h} \rangle \langle \Psi_{P_e} | \tilde{J}_2 | \Psi_{P_h} \rangle$

Evolution en fonction du champ

Plaçons nous dans la base des états les plus bas en énergie

$$\{|\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle; |\Psi_{S_e}\Psi_{Px_h}\rangle; |\Psi_{S_e}\Psi_{Py_h}\rangle\}$$

La présence du champ va permettre de coupler ces états ;

L'état fondamental devient :

$$|\Psi_{fond}\rangle = \alpha|\Psi_{S_e}\Psi_{S_h}\rangle + \mathcal{C}(F)\cos(\theta_F)|\Psi_{S_e}\Psi_{Px_h}\rangle + \mathcal{C}(F)\sin(\theta_F)|\Psi_{S_e}\Psi_{Py_h}\rangle \quad (D.6)$$

où $\mathcal{C}(F)$ est proportionnel à F .

Avec les notations de l'équation (1.) et par intégration sur $\vec{r}$ de $e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}}$ de $\Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r})$, on a :

$$\int d\vec{r} \Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} = \alpha \langle \Psi_{S_e} | \tilde{J}_0 | \Psi_{S_h} \rangle + i \mathcal{C}(F) \left[\cos(\theta_F) \cos(\theta_q) + \sin(\theta_F) \sin(\theta_q) \right] \langle \Psi_{S_e} | \tilde{J}_1 | \Psi_{P_h} \rangle \quad (D.7)$$

un développement de la partie imaginaire (la partie réelle n'induisant aucune contribution dans le splitting d'échange) nous permettra d'obtenir un $\cos(2\theta_F)$ devant le facteur en $\cos(2\theta_q)$ et un $\sin(2\theta_F)$ devant le facteur en $\sin(2\theta_q)$ soit :

$$\int_0^{2\pi} d\theta_q e^{2i\theta_q} \left| \int d\vec{r} \Psi_{fond}(\vec{r}, \vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \right|^2 = \frac{\mathcal{C}^2(F)}{2} e^{2i\theta_F} \left(\langle \Psi_{S_e} | \tilde{J}_1 | \Psi_{P_h} \rangle \right)^2 \quad (D.8)$$

Annexe E. : modélisation de l'effet piézo-électrique

Le potentiel piezoélectrique est donné par :

$$V_p(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \int \frac{\vec{P}(\vec{r}') \cdot (\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d^3\vec{r}' \quad (\text{E.1})$$

où

$$\frac{\vec{P}(\vec{r}') \cdot (\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} = -\vec{P}(\vec{r}') \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}'} \left(\frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right) \quad (\text{E.2})$$

Une transformation de Fourier du potentiel coulombien nous permet alors d'écrire :

$$\vec{P}(\vec{r}') \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}'} \left(\frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right) = -i\vec{P}(\vec{r}') \cdot \vec{q} V_q e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \quad (\text{E.3})$$

avec

$$V_q = \frac{\alpha}{q^2}$$

L'équation... devient alors :

$$V_p(\vec{r}) = -\frac{i\alpha}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int d\rho' \int dz \int d\vec{q}_\perp \int dq_z \vec{P}(\vec{r}') \cdot \vec{q} \frac{e^{i\vec{q}_\perp \cdot (\rho - \rho')}}{q_\perp^2 + q_z^2} e^{iq_z(z-z')} \quad (\text{E.4})$$

On pose

$$P_x = -\mathcal{F}(\rho) \cos(\theta) \quad (\text{E.5})$$

$$P_y = \mathcal{F}(\rho) \sin(\theta) \quad (\text{E.6})$$

$$P_z = 0 \quad (\text{E.7})$$

L'intégration sur q_z puis l'intégration sur z' nous donne :

$$V_p(\vec{r}) = \frac{i\alpha}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} 2\pi \int \rho' d\rho' \mathcal{F}(\rho') \int d\vec{q}_\perp \int d\theta_q e^{i\vec{q}_\perp \cdot \vec{\rho}} \int d\theta_{\rho'} (\cos(\theta_{\rho'}) \cos(\theta_q) - \sin(\theta_{\rho'}) \sin(\theta_q)) e^{-i\vec{q}_\perp \cdot \vec{\rho}'} \quad (\text{E.8})$$

Une intégration sur $\theta_{\rho'}$ puis θ_q donne :

$$V_p(\vec{r}) = -\frac{\alpha}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}(2\pi)^3 \cos(2\theta_\rho) \int d\rho' \rho' \mathcal{F}(\rho') \int_0^\infty dq_\perp J_1(q_\perp \rho') J_2(q_\perp \rho) \quad (\text{E.9})$$

d'où

$$V_p(\vec{r}) = -\frac{\alpha}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r}(2\pi)^3 \frac{\cos(2\theta_\rho)}{\rho^2} \int d\rho' \rho'^2 \mathcal{F}(\rho') H(\rho - \rho') \quad (\text{E.10})$$

Bibliographie

- [1] V. Berger and J.M. Gérard, C. R. Physique **4** (2003)
- [2] A.Vasanelli, thèse de doctorat de l'université Paris VI (2002) : *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*
- [3] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterosructures*, Les Ulis, Les Editions de Physique, 1988
- [4] J. Y. Marzin and G. Bastard, Solid State Commun.**92**, 437 (1994)
- [5] Ph. Lelong, O. Heller and G. Bastard, Phys. E**2** 678 (1999)
- [6] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzellen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître and J. M. Gérard, Phys. Rev. Lett**83** (1999)
- [7] O. Stier M. Grundmann and D. Bimberg, Phys. Rev. B**59**, 5688 (1999)
- [8] R. André, thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier Grenoble 1 (1994) : *Effet piezo-électrique dans les puits quantiques CdTe/CdMnTe et CdTe/CdZnTe*
- [9] Y.M. Niquet, Phys. Rev. B**57**, 14850 (1998)
- [10] Hongtao Jiang and Jasprit Singh, Phys. Rev. B**56**, 4696 (1997)
- [11] O. Stier, Berlin studies in Solid State Physics 7 (2001) : *Electronic and Optical Properties of Quantum Dots and Wires*
- [12] Ph. Lelong, thèse de doctorat de l'université Paris IV (1997) : *Etats multi-électroniques fortement corrélés de boîtes quantiques nanoscopiques*
- [13] S. Hameau, thèse de doctorat de l'université Paris VI (2000) : *Systèmes d'électrons dans les nanostructures semi-conductrices à confinement quantique dans 2 ou 3 directions*
- [14] O. Verzellen, thèse de doctorat de l'université Paris VI : *Interaction électron-phonon LO dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*
- [15] C. Kammerer, thèse de doctorat de l'université Paris VI (2002) : *Spectroscopie Optique de boîtes quantiques uniques : Effets de l'environnement*

- [16] P. Borri, W. Langbein, J.M. Hvam and F. Martelli, Phys. Rev. **B59** 2215 (1999)
- [17] G. Cassaboïs, A.L.C. Triques, F. Bogani, C. Delalande, Ph. Roussignol and C. Piermarocchi, Phys. Rev. **B61** 1696 (2000)
- [18] P. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, (Springer-Verlag, Berlin, 1999)
- [19] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, (Editions du CNRS, 1996)
- [20] G. Bastard, *Mécanismes de décohérence dans les boîtes quantiques de semiconducteur*, Collège de France, Paris, 2002
- [21] O. Madelung, *Introduction to Solid-State Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1981)
- [22] I. Favero, G. Cassaboïs, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, Ph. Roussignol and J. M. Gérard, Phys. Rev. **B68** 233301 (2003)
- [23] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal and H. Mariette, Phys. Rev. **B63** 155307 (2001)
- [24] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang and D. Bimberg, Phys. Rev. Lett. **87** 157401 (2001)
- [25] O. Verzelen, R. Ferreira and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. **88**, 146803 (2002)
- [26] S.A. Empedocle, Phys. Rev. Lett. **77** 3873 (1996)
- [27] H. D. Robinson et B.B. Goldberg, Phys. Rev. **B61** R5086 (2000)
- [28] V. Turck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U.W. Pohl, B. Bimberg and R. Steingrüber, Phys. Rev. **B61**, 9944 (2000)
- [29] J.M. Gérard, J.B. Génin, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouché and F. Barthe, J. Crystal Growth **150** 351 (1995)
- [30] O. Heller, Ph. Lelong and G. Bastard, Phys. Rev. **B56** 4702 (1997)
- [31] 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, Phys. Rev. Lett. **84** 733 (2000)
- [32] L.C. Andreani, Solid State Commun. **77** 641 (1991)
- [33] D.S. Citrin, Phys. Rev. **B47** 3832 (1993)
- [34] A.V. Uskov, I. Magnusdottir, B. Tromberg, J. Mork and R. Lang, Appl. Phys. Lett. **79** 1679 (2001)
- [35] R. J. Cook and H. J. Kimble, Phys. Rev. Lett. **54** 1023 (1985)

- [36] A.I. Burshtein, JETP**22**, 939 (1966)
- [37] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo and T. Takagahara, Phys. Rev. Lett**87** 246401 (2001)
- [38] Marlan o. Scully and M. Suhail Zubairy, *Quantum Optics* (Cambridge University Press, 1997)
- [39] B. R. Mollow, Phys. Rev.**A5** 1522 (1972)
- [40] W. Press, B. Flannery, S. Teukolsky and W. Vetterlin, *Numerical Recipes* (Cambridge University Press, 1989)
- [41] D.J. Higham, *An Algorithmic Introduction to Numerical Simulation of Stochastic Differential Equations*, SIAM Review**43**, 525 (2001)
- [42] D. Birkedal, K. Leosson and J. M. Hvam, Phys. Rev. Lett.**87** 227401 (2001)
- [43] L. Besombes, thèse de doctorat de l'université Josphe Fourier Grenoble 1 (2001) : *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI*
- [44] L.C. Andreani, *Confined Electrons and Photons*, Plenum Press, New York, 1995
- [45] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke and S. N. Walck, Phys. Rev. Lett**82** 1748 (1999)
- [46] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer and D. Park, Phys. Rev. Lett**76** 3005 (1996)
- [47] A. franceschetti, L.W. Wang, H. Fu and A. Zunger, Phys. Rev. B**58**, R13367 (1998)
- [48] G.E. Pickus et G.L. Bir, Sov. Phys. JETP**33**, 108 (1971)
- [49] 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, Phys. Rev. B**65**, 195315 (2002)
- [50] M. Chamarro, C. Gourdon, P. Lavallard, O. Lublinskaya and A.I. Ekimov, Phys. Rev. B**53**, 1336 (1996)
- [51] S.V. Gupalov, JETP**86**, 388 (1998)
- [52] D. Larousserie and R. Ferreira, Phys. Rev. B**60**, 1892 (1999)
- [53] T. Takagahara, Phys. Rev. B**62**, 16840 (2000)
- [54] R. Ferreira, Physica E**13**, 216 (2002)
- [55] M. Abramovitz and I. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*(Dover Publication, Inc., New York)

- [56] V. K. Kalevich, Phys. Solid State**41**, 781 (2001)
- [57] H. Gotoh, Appl. Phys. Lett**72**, 1341 (1998)
- [58] J.F. Nye, Physical Properties of Crystals (Oxford Uni. press, Oxford, England, 1957)
- [59] J.H. Davies, J. Appl. Phys.**84**, 1358 (1998)

Electronic states of semiconductor quantum dot : environment effects and spin dependant coupling

Abstract

After having calculated the bound states of électrons and holes of an isolated self-organised InAs/GaAs quantum dot, we present the optical properties of such nanostructures.

First, we investigate the influence of the electrostatic environment on the quantum dot decoherence. We show that the electrostatic fluctuations result in two kinds of influence : on the one hand, they only shift the energy transition without involving any broadening, on the other hand, they cause homogeneous broadening like the motional narrowing.

Then, we investigate the effects of the long range exchange interaction on the fine structure of the dot electron-hole pair. We show the possibility of canceling the exchange splitting which results from the shape anisotropy by applying a lateral electric field along its major axis. We also show that a polarisation anisotropy appear because of the nature of the exchange interaction.

Keywords

Quantum dot
III-V Semiconductor
Coherence

Stark Effect
Optical Transition
Exchange interaction

Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin

Résumé

Après avoir calculé les états liés d'électrons et de trous dans une boîte quantique auto-organisée InAs/GaAs isolée, nous présentons certaines caractéristiques des propriétés optiques de ces nanostructures.

Dans une première partie, nous étudions le rôle joué par l'environnement électrostatique sur la perte de cohérence dans les boîtes. Nous montrons que les fluctuations électrostatiques sont essentiellement de deux types, engendrant soit un décalage en énergie de la transition sans induire de déphasage, soit un élargissement homogène du type rétrécissement par le mouvement.

Dans une deuxième partie, nous nous intéressons à l'effet de l'interaction d'échange longue portée sur la structure fine de l'exciton confiné dans la boîte. En particulier, nous montrons la possibilité d'annuler le splitting d'échange résultant de l'anisotropie de forme de la boîte en appliquant un champ électrique le long de son grand axe. Nous montrons enfin qu'une anisotropie de polarisation apparaît à cause de la nature même de l'interaction d'échange.

Mots-clés

Boîte quantique
Semiconducteur III-V
Cohérence

Effet Stark
Transition optique
Interaction d'échange