



HAL
open science

Electrons et phonons dans les nanostructures de semiconducteurs

Robson Ferreira

► **To cite this version:**

Robson Ferreira. Electrons et phonons dans les nanostructures de semiconducteurs. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. tel-00112622

HAL Id: tel-00112622

<https://theses.hal.science/tel-00112622>

Submitted on 9 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.

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

*Electrons et phonons dans les
nanostructures de semiconducteurs*

Partie I

Robson FERREIRA

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

Mai / 2006

Ce mémoire de « Habilitation à Diriger des Recherches » est divisé en deux parties.

La partie I est composée de trois chapitres. Les deux premiers traitent des interactions entre porteurs et vibrations du réseau. Le troisième est consacré aux états électroniques non-liés des boîtes quantiques.

Le premier chapitre de la première partie (I-1) présente une description générale de l'interaction électron-phonon dans les semiconducteurs, du massif aux boîtes quantiques. L'étude des interactions entre porteurs et vibrations du réseau a grandement bénéficié des importantes avancées dans les domaines de l'élaboration de matériaux nanostructurés et des techniques d'analyse spectroscopiques. L'accès à la structure fine des transitions optiques (par exemple, par des techniques de sonde locale à haute résolution spectrale et/ou temporelle) a permis la mise en évidence de différents effets liés aux couplages électron-phonons. Ainsi, les ailes de phonons acoustiques d'une paire radiative confinée dans une boîte quantique ont été observées dans différents types de boîtes quantiques. De même, l'existence d'un fort couplage entre les porteurs confinés et les vibrations optiques est désormais bien établie. Finalement, les processus de diffusion des porteurs par les phonons, omniprésents en physique des semiconducteurs massifs, est encore aujourd'hui au centre de nombreuses études expérimentales et théoriques dans les nanostructures. Le chapitre 1 présente donc une revue de ces différents aspects du couplage entre porteurs et phonons : leur description et leurs conséquences optiques. Il faut noter que le matériel de ce chapitre ne correspond pas à une contribution personnelle de « recherche » dans le domaine, mais plutôt à un souci pédagogique de présentation, d'une manière unifiée, des différentes facettes de l'interaction électron-phonon dans les boîtes quantiques auto-organisées

Le deuxième chapitre de la première partie présente une discussion détaillée des états polarons (première partie du chapitre : I-2A) et de la relaxation en énergie (deuxième partie du chapitre : I-2B) dans les boîtes quantiques auto-organisées de semiconducteurs. Ces états correspondent aux véritables excitations élémentaires des boîtes quantiques auto-assemblées. En effet, la description d'ordre zéro en termes d'états découplés électrons-phonons devient inappropriée en présence d'un fort couplage entre les porteurs confinés et les vibrations du réseau. On n'a pas fini d'explorer toutes les conséquences de ce couplage fort, encore aujourd'hui au centre de nombreuses études théoriques et expérimentales. Parmi les champs actuels d'investigations dans ce domaine, il faut citer :

(i) l'étude de la dynamique (linéaire) de relaxation de l'énergie des états excités d'une boîte quantique, mettant en jeu des processus intrinsèquement liés aux états mixtes de polarons (comme la désintégration par couplage anharmonique ; voir deuxième partie du chapitre) ;

(ii) les mises en évidence de couplage polaron pour les transitions optiques des boîtes quantiques chargées avec un trou (domaine FIR) ou intrinsèques (en optique interbande) ;

(iii) les études récentes de la dynamique non-linéaire (sous excitation FIR intense) des transitions polarons des boîtes;

(iv) l'observation d'un effet polaron pour les boîtes doublement chargées.

Le chapitre trois de la première partie (I-3) est un article de revue sur les états non-liés des boîtes quantiques de semiconducteurs. La plupart des études sur les boîtes quantiques sont focalisées sur la partie basse énergie du spectre (états liés). Le spectre continu joue toutefois un rôle de premier plan dans beaucoup de situations : par exemple, ce sont les états finals pour les processus d'ionisation des boîtes dopées, ou les états initiaux pour les processus de capture

(chargement des boîtes). Ces processus d'ionisation et (re)-capture se trouvent au sein même du fonctionnement de différents dispositifs, comme les détecteurs et lasers à base de boîtes quantiques. De même, ils jouent un rôle décisif dans les transitions optiques inter-bandes, à cause des transitions « croisées », c'est-à-dire, faisant intervenir des états liés d'une bande avec des états du continuum de l'autre. Pourtant, peu de travaux ont été consacrés à l'analyse de ces états. Une bonne partie du travail discuté dans ce chapitre est le résultat d'une longue étude, initiée au LPA il y a maintenant une petite dizaine d'années avec les premières études des mécanismes de capture assistée par les phonons et de relaxation Auger intra-boîte, poursuivie par le travail d'A. Vasanelli sur le fond spectral d'absorption inter-bandes, et consolidée par les récentes simulations numériques de N. D. Phuong et N. Regnault de la magnéto-absorption de différentes structures à boîtes quantiques pour la photo détection IR. Comme souligné à la fin de ce chapitre, les états non-liés jouent un rôle important dans bien d'autres situations physiques, comme pour les états « liés » excités à plusieurs particules. Ces voies de recherche, plus récentes, sont encore à leurs commencements.

La partie II du mémoire est un dossier scientifique. Il contient, en particulier, une reprise des thèmes décrits dans la partie I. Mais, il faut noter que les chapitres 1 et 2 de la partie I sont volontairement composés de façon « séminaire », avec un texte allégé supporté par un nombre considérable d'images, dans le dessein de rendre la présentation pédagogique. De même, l'article de revue proposé dans le chapitre 3 de la partie I contient un nombre important d'illustrations et références. La présentation dans la partie II est plus concise, visant une description plus ciblée de mes contributions dans ces domaines de recherche.

Chapitre 1 :

Interactions électron-phonon dans les semiconducteurs :

du massif aux boîtes quantiques 6

Chapitre 2 :

2A) Etats polarons des boîtes quantiques 37

2B) Dynamique de relaxation énergétique 75

Chapitre 3 :

Etats du continuum électronique des boîtes quantiques

auto-assemblées 103

CHAPITRE 1

*Interactions electron-phonon
dans les semiconducteurs :
du massif aux boîtes quantiques*

Electron-phonon interactions in semiconductors : from bulk material to quantum dots.

Abstract. We review different aspects of the electron-phonon interaction in bulk and structured semiconductors. The irreversible, pseudo-polaron and true polaron regimes are illustrated in the frame of various optical experiments done in different semiconductor heterostructures. These experiments clearly demonstrate that the electron-phonon interactions in heterostructures is not necessarily synonymous of lowest order perturbation, but that higher order effects or even true entanglements of electrons and ions vibrations are rather common in these low dimensional systems.

1. Introduction

The interactions of electrons in a crystal with the lattice ions was initially motivated by transport studies. The very early interpretation of the finite resistivity of charge transport in a crystal was based on the classical scattering of the carriers by the nuclei. These later were initially considered as (randomly) dispersed within the bulk material, and only later shown to occupy the sites of a periodic lattice. In the early quantum mechanical studies of Sommerfeld and Pauli, the electrons were associated to a gas of free particles moving on a position-independent background of positive charges (see for instance [Seitz]). Bloch re-introduced the discreteness of the lattice atoms : the motion of

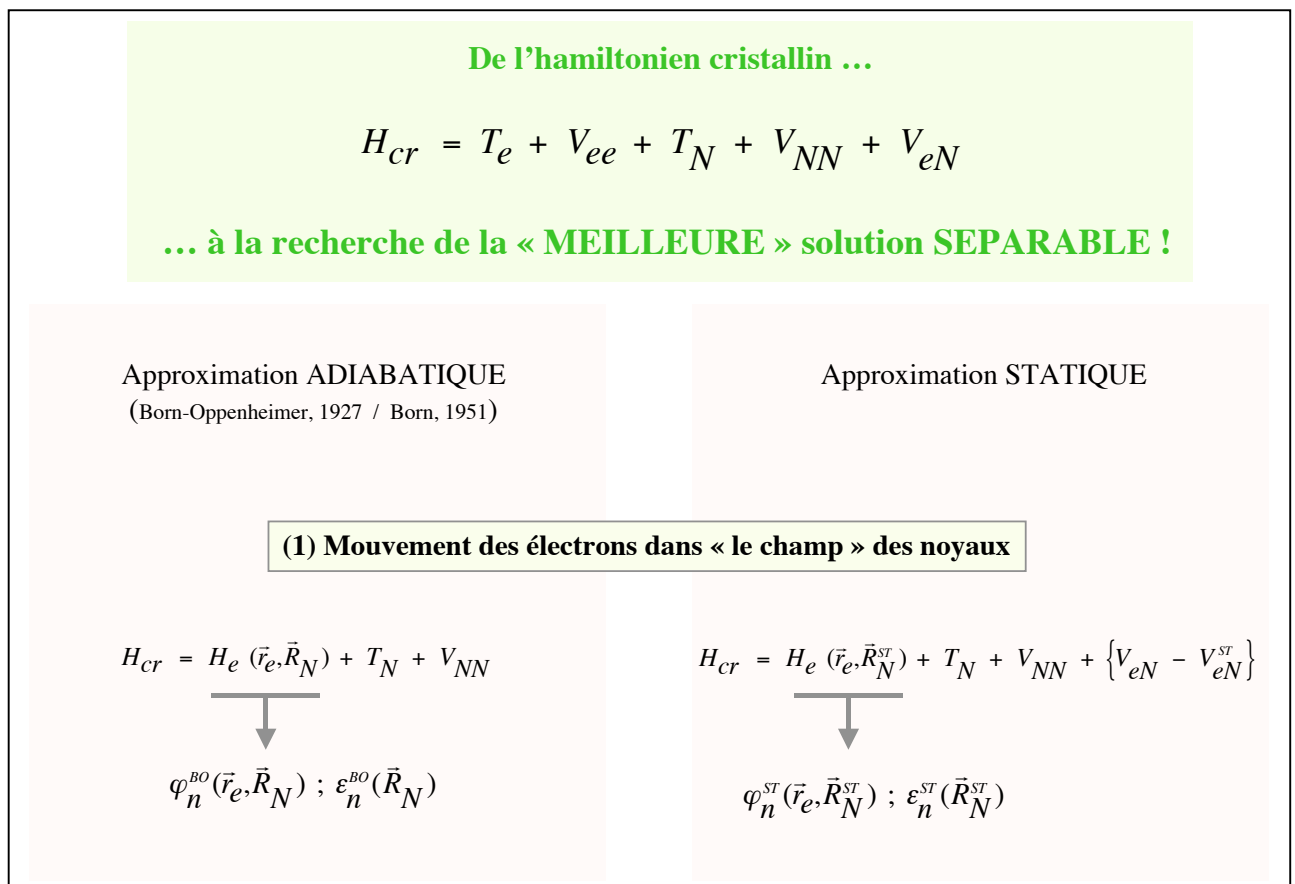
electrons in a periodic crystal is since then described in terms of the so-called Bloch states, which are « running waves » delocalized inside the whole crystal and can be associated to a propagative free-like motion. Thus, these two early quantum mechanical models (that led to free waves or Bloch states) completely abolished the old ideas of electrons being randomly scattered by the lattice atoms, but were unable to tackle the finite resistivity effect (more precisely, its temperature dependence). Only later the temperature dependent scattering of electrons was associated to the motion of atoms, namely, from the fact that the *dynamical* lattice is no longer periodic, eventhought the departures of the periodic arrangement, due to the lattice atoms motions, is in the general case very weak. Also, it was soon recognized that *collective* modes, rather than individual atomic motions, should be taken into account to quantitatively interpret different temperature dependent properties.

Here, we review some consequences of the coupling of electrons with long-wavelength lattice excitations on the optical response of bulk and nano-structured semiconductors. This review is organized as follows. We recall in section 2 the two principal models used to tackle the interplay between electron states and lattice modes in a crystal, namely the adiabatic (2.1) and the static lattice (2.2) models. We review in section 3 two important couplings for electrons in a II-VI or III-V semiconductor : the deformation potential (3.1) and the Fröhlich (or polarization potential, 3.2) couplings. Section 4 is devoted to the description of three experiments, which shed light on complementary aspects of the electron-phonon interactions, and clearly show their effects on the optical response of semiconductor nanostructures.

2. Describing the electron-lattice states

The interaction of electrons with the lattice nuclei manifests itself in a large number of phenomena. It is intrinsic to the even nature of a crystal as

composed of a large number of electrons and ions. In fact, a stable crystal suggests the existence of a balancing between the repulsive (electron-electron and nuclei-nuclei) and the attractive (electron-nuclei) interactions among the constituents of the material. One would correspondingly expect a strong entanglement of the electronic and lattice degrees of freedom. Instead, one is often able to employ a « lowest order » picture of the crystal eigenstates in terms of independent electron ($|n_{\text{elec}}\rangle$) and lattice ($|v_{\text{latt}}\rangle$) states, namely, products of the form $|n_{\text{elec}}\rangle \otimes |v_{\text{latt}}\rangle$. This decoupled picture is employed in most solid state textbooks, which present the electronic band structure for electrons moving in a periodic lattice, and the study of the phonons dispersions related to the lattice ions motions, as largely independent topics (see e.g. [FS, CK1, A&M, Y&C]). The effects related to the « electron-phonon interactions » are treated separately in a later chapter, and generally presented as small perturbations to the decoupled basis states.



(2) Hamiltonien « effectif » pour le mouvement des noyaux

$$\Psi_{cr}^{BO} = \sum_n \chi_n^{BO}(\vec{R}_N) \varphi_n^{BO}(\vec{r}_e, \vec{R}_N)$$

$$\Psi_{cr}^{ST} = \sum_n \chi_n^{ST}(\vec{R}_N) \varphi_n^{ST}(\vec{r}_e, \vec{R}_N)$$

$$H_{cr} \Psi_{cr} = \varepsilon \Psi_{cr}$$

$$\left[T_N + V_{NN} + V_n^{eff}(\vec{R}_N) - \varepsilon \right] \chi_n(\vec{R}_N) = \sum_{n' \neq n} V_{n,n'}^{MIX}(\vec{R}_N) \chi_{n'}(\vec{R}_N)$$

$$V_n^{eff} = \varepsilon_n(\vec{R}_N) + H_{n,n}^{N-A}$$

$$V_n^{eff} = \varepsilon_n + [\delta V_{eN}]_{n,n}$$

$$V_{n,n'}^{MIX} = H_{n,n'}^{N-A}$$

$$V_{n,n'}^{MIX} = [\delta V_{eN}]_{n,n'}$$

$$H_{n,n}^{N-A}(\vec{R}_N; \vec{p}_N) = \langle \varphi_n^{BO} | T_N | \varphi_n^{BO} \rangle + \sum_{(N)} \frac{1}{M_N} \langle \varphi_n^{BO} | \vec{p}_N | \varphi_n^{BO} \rangle \cdot \vec{p}_N$$

$$[\delta V_{eN}]_{n,n'}(\vec{R}_N) = \langle \varphi_n^{ST} | V_{eN} - V_{eN}^{ST} | \varphi_{n'}^{ST} \rangle$$

(3) Etats découplés

$$\Psi_{n,m(n)}^{BO} = \chi_{m(n)}^{BO}(\vec{R}_N) \varphi_n^{BO}(\vec{r}_e; \vec{R}_N)$$

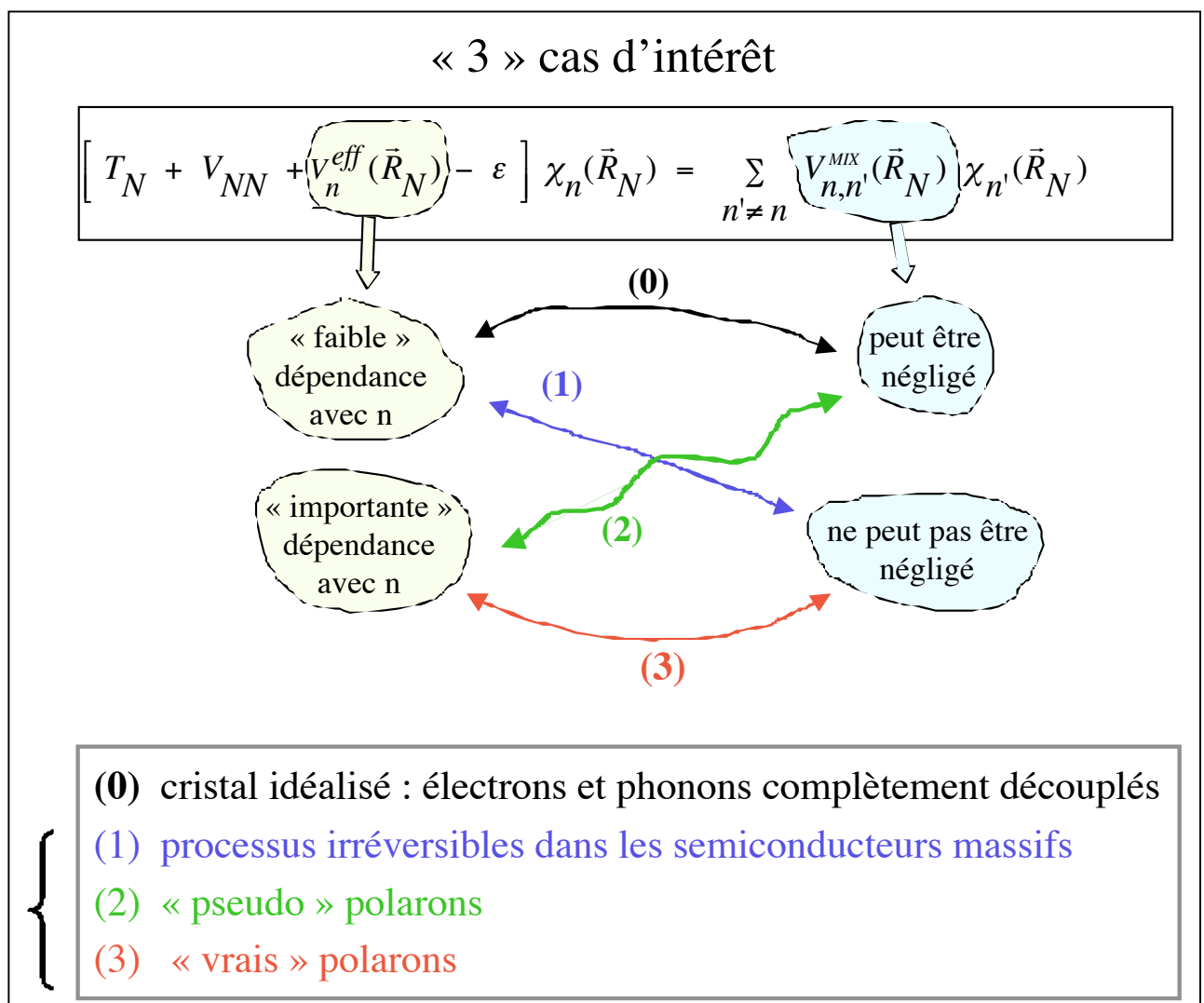
$$\Psi_{n,m(n)}^{ST} = \chi_{m(n)}^{ST}(\vec{R}_N) \varphi_n^{ST}(\vec{r}_e)$$

$$\left\langle \Psi_{n,m(n)} \middle| \Psi_{n',m'(n')} \right\rangle = \delta_{n,n'} \delta_{m,m'}$$

2.1 Adiabatic model : a molecular model for a crystal

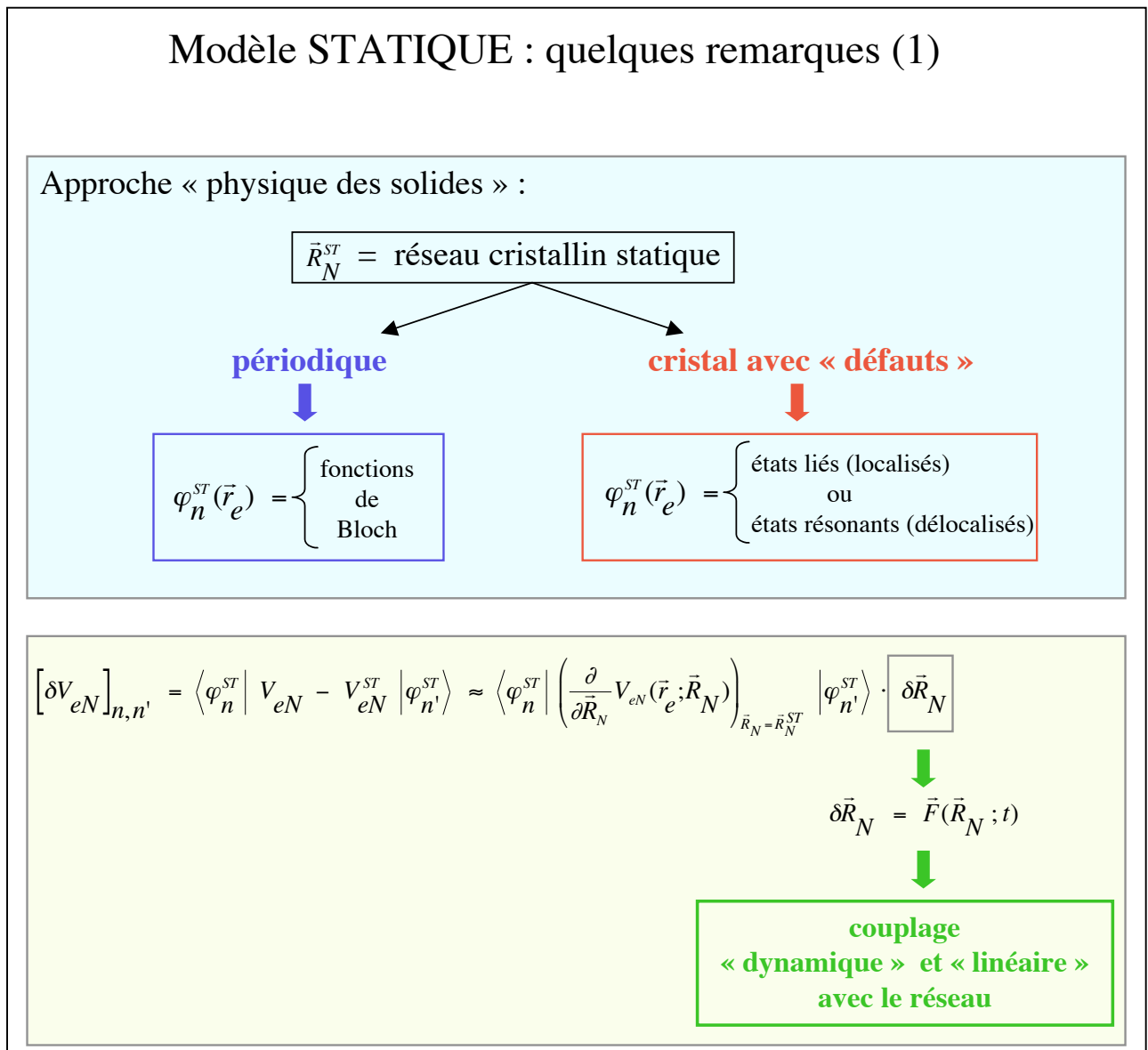
One usually invokes the so-called adiabatic (or Born-Oppenheimer - BO) approximation to justify this decoupling procedure [B&H]. This approximation, discussed in many textbooks [FS], assumes that any crystal state admits a « lowest order » description in terms of decoupled electronic and lattice motions. It based on the different inertia of the valence electrons and heavy atoms (ions plus core electrons), and was originally proposed to study molecular states, where, very roughly, it is implemented as follows. (i) We initially solve for the electronic states, by assuming that electrons move in the field generated by the instantaneous array of atoms. (ii) Then, stationary orbits for the nuclei are obtained for each particular electronic state. We end up in this way with a series of nuclei modes related to each electronic state : the “phonon clouds”. It is

well known in molecular physics that the nuclei oscillations can be different (in frequency, amplitude and oscillation centre) for different electronic states. In particular, the nuclei's oscillation centers may slightly change when the electrons are promoted to one excited state. One says that the nuclei relax to follow the electronic excitation. (iii) Let us finally recall that decoupled nuclei-electron states may couple beyond the adiabatic approximation. This non-adiabaticity leads to new stationary eigenstates that are true entanglements of a few electronic and nuclei states.



2.1 Static-lattice model : a “solid-state” approach

As we recall in the following, phonon clouds (and the corresponding lattice relaxation effect) and entanglements of decoupled states may also exist in a crystal. Moreover, electron-lattice scatterings processes, related to irreversible evolutions among a large set of decoupled crystal states, are of prime importance in semiconductors.



The adiabatic approximation has also been employed to describe electron-lattice states and interactions in semiconductors. Its use is fully justified for “molecular”-like situations, as e.g. when defects are present in the crystal. For

instance, one substitutional impurity may tightly bind one electron and strongly affect the motion of only a few nearby native lattice atoms. However, its implementation for a general case represents a formidable task, because of the macroscopic number of nuclei per unit volume and of electronic states per band. A second picture more naturally incorporates the existence of a macroscopic array of atoms : the “static lattice” (SL) model. It is implemented as follows (compare with the BO model discussed above). (i) The ground state of the crystal is a N-body self-consistent problem for the electrons-nuclei system, which will not be tackled here. Instead, one starts from the static one-electron crystal potential resulting from this N-body problem, and assume it can be solved for the one-electron states (the Bloch states in the case of a periodic crystal). Note that the electron states are not functions of the different configurations for the nuclei positions, but all follow from the same static array (contrarily to the adiabatic model). (ii) The motion of the nuclei around their equilibrium positions (the sites of the static lattice) is subsequently considered for each of the electron states. This “diagonal” (with respect to the electron states) approximation in the static model plays the same role as the “adiabatic” one in the BO model, namely, in providing a lowest-order series of decoupled electron-lattice states. The lattice modes (or phonon clouds) related to different electron states may considerably differ, leading to possible relaxation effects for the lattice whenever the electron changes its state. (iii) Finally, “non-diagonal” couplings do also exist in the static model, which play an equivalent role as the “non-adiabatic” ones in the BO model, i.e., they are able to admix lattice states related to different electronic orbits. This non-diagonal terms may either lead to new stationary eigenstates that are true entanglements of a few electronic and nuclei states, or trigger irreversible evolutions inside a large set of decoupled states (see below). In conclusion, one can use either adiabatic or static-lattice models to handle the different effects underlying the electron-lattice couplings, eventhought the later more clearly display the crystalline nature of a

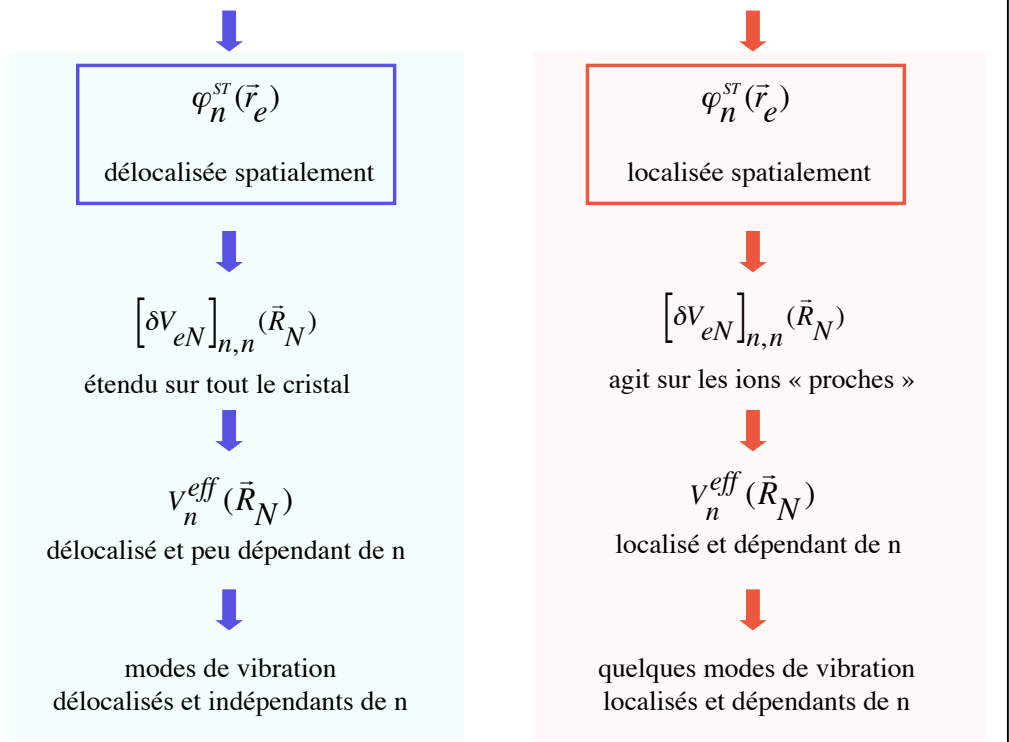
semiconductor. Its diagonal approximation leads to phonon clouds (and possible lattice relaxation effects), while non-diagonal couplings introduce either entanglements (stationary mixings inside a restricted set of decoupled states) or irreversibility (disintegration of one particular decoupled state into a large ensemble of decoupled states). The SL model is further discussed in the following.

Modèle STATIQUE : quelques remarques (2)



Couplage diagonal : à chaque état électronique son cortège de modes vibratoires

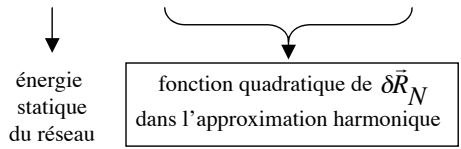
$$\left[\delta V_{eN} \right]_{n,n} \approx \left\langle \varphi_n^{ST} \left| \left(\frac{\partial}{\partial \vec{R}_N} V_{eN}(\vec{r}_e; \vec{R}_N) \right) \right|_{\vec{R}_N = \vec{R}_N^{ST}} \varphi_n^{ST} \right\rangle \cdot \delta \vec{R}_N$$



Modèle STATIQUE : quelques remarques (3)

☀ Couplage diagonal : à chaque état électronique son cortège de modes vibratoires

$$V_{NN}(\vec{R}_N) = V_{NN}^{ST} + \left[V_{NN}(\vec{R}_N) - V_{NN}^{ST} \right] \equiv V_{NN}^{ST} + \delta V_{NN}(\vec{R}_N)$$



Coordonnées Normales et Espace des Configurations :
 \vec{Q}_v fonction linéaire de $\delta \vec{R}_N$ (ex: modes LO)

$$T_N + \delta V_{NN} + [\delta v_{eN}]_{n,n}$$

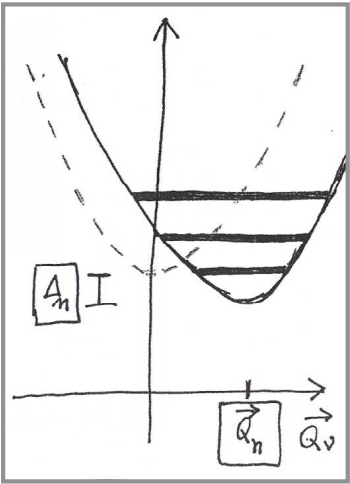
$$\sum_v \left\{ \frac{p_v^2}{2} + \frac{1}{2} \omega_v^2 Q_v^2 + \frac{\bar{a}_{n,n} \cdot \vec{Q}_v}{\Delta_n} \right\}$$

oscillateur harmonique ● « champ électrique »

(1) déplacement du centre d'oscillation : $\bar{Q}_n \propto \bar{a}_{n,n}$

(2) décalage du zéro d'énergie potentiel : $\Delta_n \propto \bar{a}_{n,n}^2$

analogie moléculaire : $\bar{a}_{n,n}$ réel



Let us initially recall three aspects of the diagonal SL approximation applied to a perfect semiconductor, which rely on three properties of the one-electron Bloch states. (i) Firstly, these states are delocalized over the whole crystal, and thus also the corresponding electronic “clouds” (the electronic probability densities $|\Psi|^2$). This has a major consequence on the nuclei’s motions, namely, the lattice vibrations related to any electron state must also be delocalized excitations within the whole crystal : otherwise, localized stationary modes would appear, in contradiction with the translational invariance of the

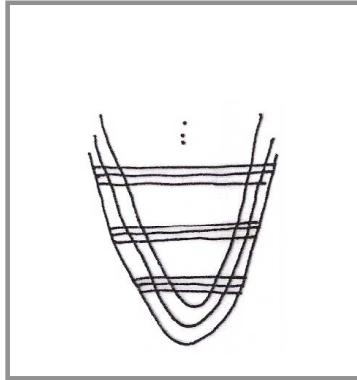
underlying static lattice. (ii) Secondly, the probability distributions for Bloch states pertaining to the same band are very similar : two clouds differ only because of their different “atomic” contributions (since the plane wave part of their Bloch states gives an uniform charge background), which are pretty similar for states of the same band and near energies (like e.g. conduction states with small wavevectors). As a consequence, the nuclei’s motions related to different electron states of the same band should not differ too much. This indicates that the bulk lattice modes obtained in the diagonal approximation are to a large extent independent of the actual electronic state and, as a consequence, that lattice relaxation effects induced by an intra-band electronic excitation are expected to be negligible in a perfect semiconductor. These two points show that the lowest order bulk states of the electron-lattice system are not only decoupled electron and lattice states, but further simplify, with electronic levels and phonon modes rather *independent* of each other. (iii) Contrarily to the intra-band case, the atomic parts of Bloch states pertaining to different bands are rather different (for instance, the P-like and S-like atomic functions for the valence and conduction bands, respectively). This implies that relaxation effects, related to the existence of radically different charge clouds, should be more pronounced in bulk inter-band experiments. However, this effect is generally neglected in the study of bulk materials. This is mainly because the inter-band transition is in addition affected by intra-band non-diagonal couplings (as discussed in the next paragraph), which broaden the initial and final states and mask the observation of relaxation effects in the inter-band optical response. As we will see later, intra-band broadening is quenched in confined quantum heterostructures, and lattice relaxation effects related to the different conduction and valence bound states can be (and have actually been) observed (see section 4.2).

Modèle STATIQUE : quelques remarques (4)

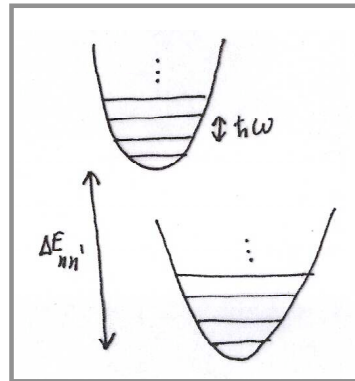


Couplage Non-diagonal : « couplage électron-phonon »

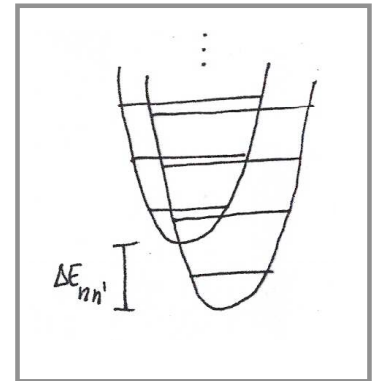
3 cas de figure



$\Delta E_{n,n'}$: continuum large



$\Delta E_{n,n'} \gg \hbar\omega_{LO}$
pas de couplage non-diagonal
à l'ordre zéro



$\Delta E_{n,n'} \approx \hbar\omega_{LO}$
diagonalisation
à priori
complète

$$[\delta V_{eN}]_{n,n'} \bar{A}_{n,n'} \cdot \delta \vec{R}_N$$

processus à 1 phonon
(couplage linéaire)

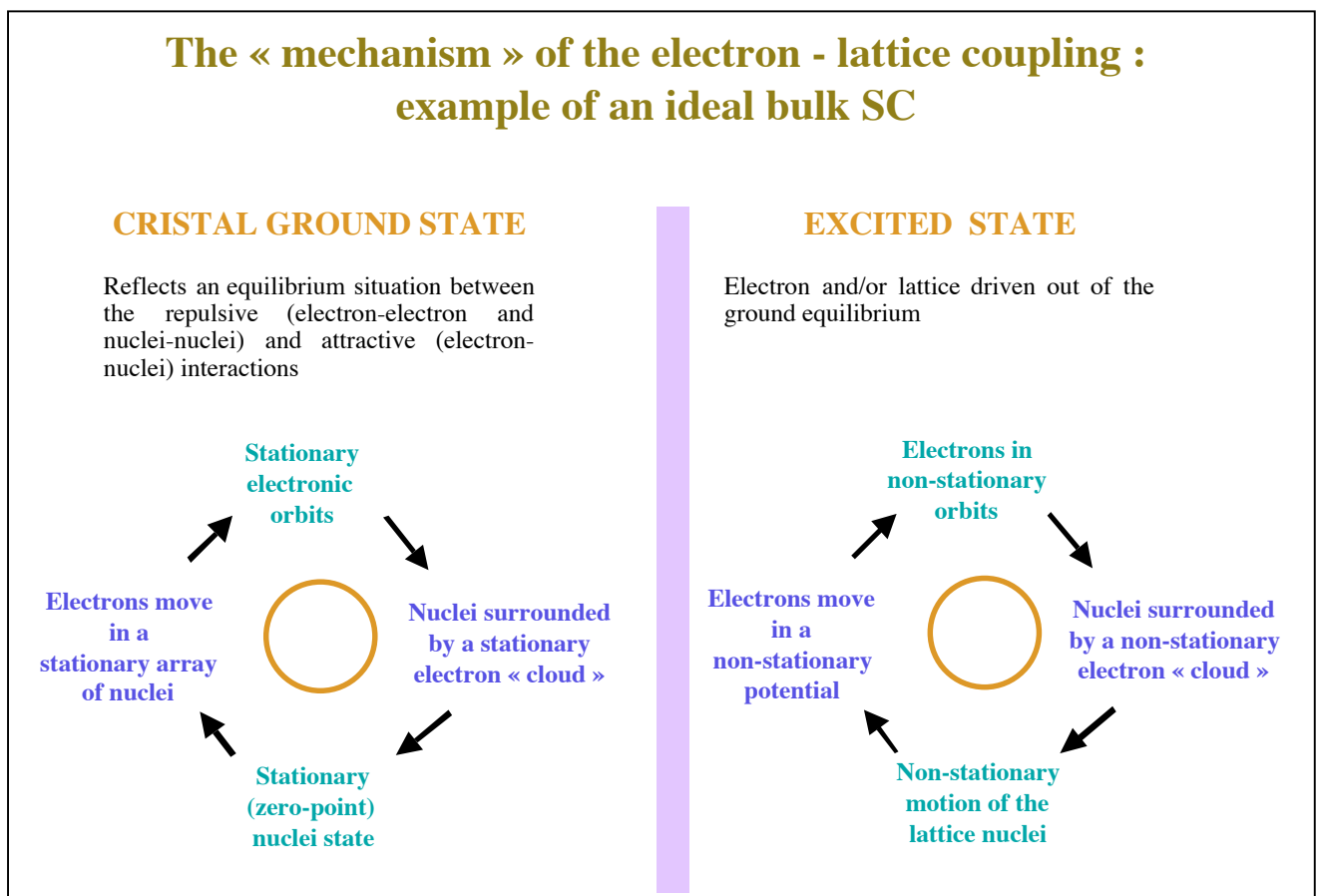
Let us now briefly consider the effect of non-diagonal couplings for a perfect semiconductor. They mix different electron-lattice decoupled states. In a bulk material, their principal contribution is in introducing intra-band scattering among the diagonal states, which are in particular responsible for the temperature dependence of the resistivity of an electron gas. They also lead to the formation of polarons states, which are (at very low temperatures) stationary admixtures of the decoupled states. We will not consider here bulk polarons (see e.g. [AD, CK2]), since the materials we are interested in display only small polaron couplings, but will discuss later the much more robust polaron states that may appear in nanostructured semiconductor.

Let us finally briefly recall some aspects of the static-lattice model applied to a non-perfect lattice. In this case, some electron states may be localized in space. The charge cloud related to a bound electron state is no longer translation invariant and, correspondingly, the motion of the lattice atoms in the neighborhood of the defect may differ significantly from that of far atoms. Moreover, the near atoms motions may considerably depend on the precise electron bound state, and some lattice relaxation can result from an electron transition. In this picture, the nuclei's motions are affected by the presence of the defect only indirectly, i.e., via their couplings to the localized electron. Direct effects, related to the interactions among the nuclei themselves, are not considered here (for a review on the localized modes resulting from a material modulation in a heterostructure, see e.g. [ref]). As a consequence, one may implement the static-lattice model for the study of nanostructures as follows. (i) In this case, the static crystal potential fully incorporates the presence of different materials, and the resulting one-electron states display the localization effects due to the nanostructuration. (ii) When necessary, the lattice modes corresponding to one particular electron state are obtained by using the lattice bulk modes to diagonalize the electron-lattice coupling. This leads to pseudo-polaron states, i.e., states formed by direct products $|n_{\text{elec}}\rangle \otimes |v_{\text{latt}}\rangle$ involving the same electronic state $|n_{\text{elec}}\rangle$ but complex admixtures $|v_{\text{latt}}(n_{\text{elec}})\rangle$ (the phonon clouds associated to $|n_{\text{elec}}\rangle$) of bulk modes. (iii)

3. Phonons and electron-phonon interactions

In the ground crystal state, the nuclei perform stationary (zero-point) oscillations and the electrons are organized in stationary orbits. The crystal is in an excited state when the electrons and/or the lattice are driven out of its ground state (for instance, by optical excitation). When the electrons are excited, the nuclei, surrounded by a non-stationary electronic cloud, can no longer perform

stationary zero-point oscillations around their initial equilibrium positions. The lattice modes are in the general case always affected by the electronic excitation. However, within the decoupled approximation, the lattice can become excited without affecting the electronic cloud [B&H]. Actually, in the real situation (i.e., beyond the adiabatic approximation), the electrons move in a non-stationary potential when the lattice is excited, and, strictly speaking, can no longer remain organized in stationary orbits. The electronic cloud reacts to the lattice excitation and vice-versa. This means that the lattice and the electrons may exchange (in a reversible or irreversible way) energy and momentum. We characterize correspondingly the « electron-phonon interactions » by the mechanisms allowing the electron and the lattice to exchange energy and momentum. We will discuss two of these mechanisms in sections 3.1 and 3.2. Let us however first recall some general properties of phonons and of the elementary electron-phonon exchanges.



Phonons are obtained by quantizing the vibration modes of the harmonic lattice. Correspondingly, a phonon is intrinsically related to a change of the lattice state, and one phonon state replaces two lattice ones. Its energy (momentum) is the energy (momentum) difference between the two lattice ones. One says correspondingly that the electron exchange phonons with the lattice. The elementary exchange processes are the one-phonon emission and one-phonon absorption processes. These can be either real or virtual exchange processes. Virtual exchanges admix different electron and/or phonon states and introduce renormalized energies, but do not lead to irreversible processes. For instance, pseudo-polaron states result from the virtual exchanges between propagative bulk phonons and one bound electron state, while true polaron states result from virtual exchanges involving different (at least two) bound states in the presence of propagative bulk phonons. Pseudo-polarons and polarons are thus respectively related to the diagonal and the non-diagonal terms of the static-lattice model. Irreversibility, on the contrary, corresponds to real exchanges that occur when resonant couplings are possible between a large number of decoupled states disposed in a continuum spectrum. These exchanges are triggered by the sole non-diagonal terms of the SL model. However, as already introduced above, lattice relaxation can occur whenever the electron is forced to change state. This relaxation actually involves the emission and/or absorption of propagative phonons, and thus corresponds to an irreversible process for the lattice.

What to do with the electron-phonon interaction ?

It depends primarily on the **JOINT** (electrons + lattice) **DENSITY OF STATES** that verify

Resonance condition for energy : $\Delta E = E_1 - E_2 = \pm \hbar\omega_{\text{ph}}$	Momentum conservation (when necessary)
--	---

(A)
 verified by a large number of states that form a dense (continuous) spectrum

(B)
 verified by a few electron and phonon states

(C)
 never verified



Effective electron-phonon mixing

Mixed (polaron) states

pseudo-polaron states

The realm of the FERMI GOLDEN RULE :
 irreversible scattering processes

NON - ADIABATIC situation :
 * Free and bound polarons as the new elementary excitations
 * Lattice and electronic motions strongly entangled

ADIABATIC situation :
 * Illustration of the Born-Oppenheimer approx.
 * The lattice motion depends on the electronic state



irreversible scattering of propagative carriers by bulk-like phonon modes due to various electron-phonon couplings

usual regime for transport studies but also relevant to optical studies



Starting point : study of bulk-like phonon modes and their couplings to propagative carriers

To proceed further, we need to precise the electron-phonon interaction. Here, we shall consider two model interactions : the coupling of conduction electrons with longitudinal acoustical (LA) and with longitudinal optical (LO) phonons in III-V or II-VI semiconductors. In both cases we shall be concerned with the sole long-wavelength phonons, for which the crystal can be approximated by a continuous medium. We present below a simple (classical) description of these couplings. Actually, one can show that these two interactions follow from the general framework described in the previous sections.

3.1 Coupling to LA waves

The first one leads to the so-called deformation potential interaction involving long-wavelength LA phonons. Within the one-band effective mass approximation, the single electron states are solutions of the envelope function problem :

$$[T + V_B(\mathbf{r})] \Psi = (E - E_c) \Psi$$

where T is the kinetic energy operator and V_B an external or internal potential acting on the envelope $\Psi(\mathbf{r})$. E is the energy with respect to the conduction band bottom E_c . The energy E_c is characteristics of the crystal equilibrium (or ground) state. More precisely, it depends on the arrangement of the atoms of the crystal via for instance the unit cell volume V_{eq} . A long-wavelength sound propagating inside the medium creates compression and dilatation zones. By developing to the first order one gets :

$$E_c(\mathbf{r},t) = E_c(V_{eq} + \delta V(\mathbf{r},t)) \approx E_c(V_{eq}) + D_c \delta V(\mathbf{r},t)/V_{eq}$$

$$D_c = V_{eq} [(\partial E_c(V)/\partial V)_{V_{eq}}]$$

where $\delta V(\mathbf{r},t)$ is the *local* unit cell volume deformation. By writing the displacement of the atoms as

$$\delta(\mathbf{r},t) = (\delta_0/2) \exp\{ i (\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t) \} + c.c.$$

where δ_0 is the amplitude of the oscillation inside each cell, \mathbf{q} the wavevector and ω the frequency of the wave, one gets

$$\begin{aligned}\delta V / V &= \text{div} (\delta(\mathbf{r},t)) \\ [T + V_B(\mathbf{r}) + V_{e\text{-ph}}(\mathbf{r},t)] \Psi &= [E - (E_c)_{\text{eq}}] \Psi \\ V_{e\text{-ph}}(\mathbf{r},t) &= D_c \text{div} (\delta(\mathbf{r},t)) \\ &= D_c (i/2) [\delta_0 \cdot \mathbf{q}] \exp \{ i (\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t) \} + \text{c.c.}\end{aligned}$$

This classical model permits to recover one important result, namely that the electrons couple only to *longitudinal* sound waves. Note that the strength of the coupling is proportional to a band-dependent parameter of the material. The quantum mechanical version of the previous analysis leads to the interaction potential involving the creation and annihilation operators for phonons. D_c is the so-called deformation potential [AD, Y&C].

3.2 Coupling to LO waves

The second coupling mechanism involves a polarization potential interaction involving long-wavelength LO phonons. In a III-V or II-VI semiconductor, the two atoms inside each unit cell are different (like the Ga and As) and their bonding involves some charge transfer : one approximately says that a local dipole appears for each interatomic bonding. Each Ga atom has four As neighbors in the zinc-blend lattice. When the lattice is at equilibrium, the four local dipoles add and vanish, as expected (there is no macroscopic field inside the bulk crystal). When the atoms move, on the other hand, the local (at the level of each unit cell) dipole no longer vanishes. The polarization potential appears then as a dipolar interaction of the electron with oppositely charged atoms inside each unit cell. Let e^* be the effective charge transfer between the two atoms of the N^{th} cell (centered around \mathbf{r}_N). The resulting dipolar potential reads

$$V_{\text{dip}}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_N) = e^* / | \mathbf{r}_e - (\mathbf{r}_N + \delta \mathbf{r}_{1N}) | - e^* / | \mathbf{r}_e - (\mathbf{r}_N + \delta \mathbf{r}_{2N}) |$$

$$\approx e^*(\delta\mathbf{r}_{1N}-\delta\mathbf{r}_{2N}) [\mathbf{r}_e-\mathbf{r}_N] / |\mathbf{r}_e-\mathbf{r}_N|^3$$

where $\delta\mathbf{r}_{1N}$ and $\delta\mathbf{r}_{2N}$ are the positions of atoms « 1 » and « 2 » with respect to \mathbf{r}_N .

The separation between the two atoms has two contributions, one static and one dynamic, as follows : $\delta\mathbf{r}_{1N} - \delta\mathbf{r}_{2N} = (\delta\mathbf{r}_{1N} - \delta\mathbf{r}_{2N})_{\text{static}} + \delta\mathbf{r}_N(t)$

Only the second term contributes to the electron-phonon interaction (the first one is incorporated in the band energy calculations). Assuming a running wave

$$\delta\mathbf{r}_N(t) = (\delta\mathbf{r}_0/2) \exp\{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)\} + \text{c.c.}$$

of amplitude $\delta\mathbf{r}_0$ and adding the contributions of all the unit cells, we end up with the total dipolar potential

$$V_{\text{dip}}(\mathbf{r}_e, t) = \sum_N V_{\text{dip}}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_N) \propto i e^* [\delta\mathbf{r}_0 \cdot \mathbf{q} / q^2] \exp\{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)\} + \text{c.c.}$$

This classical model predicts that the electrons couple only to *longitudinal* waves, and that the coupling is proportional to $1/q$. These two features are characteristic of the Fröhlich hamiltonian, which describes the interaction of electrons with longitudinal optical phonons [AD, Y&C].

Electron-phonon interactions

- BULK** {
- Continuous medium model for lattice waves
 - Effective mass approximation for electrons

$$H = \sum_{\mathbf{q}} \left(V_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} + V_{\mathbf{q}}^* a_{\mathbf{q}}^+ e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \right)$$

Fröhlich (1950)

Polarisation potential :

interaction between a charge and the dipoles oscillating at the LO frequency

$$V_{\mathbf{q}} = i \sqrt{\frac{4\pi}{V_{cr}}} \alpha_F \frac{\hbar\omega_{LO}}{q} \left(\frac{\hbar}{2m^* \omega_{LO}} \right)^{1/4}$$

$$\alpha_F = \frac{e^2}{2\hbar} \left(\frac{1}{\epsilon_{\infty}} - \frac{1}{\epsilon_0} \right) \sqrt{\frac{2m^*}{\hbar\omega_{LO}}}$$

$\alpha_F =$ Fröhlich constant

($\alpha_F \approx 0.06$; GaAs)

Bardeen & Shockley (1950)

Deformation potential :

interaction of electrons and sound waves (LA phonons)

$$V_{\mathbf{q}} = -i \sqrt{\frac{D^2}{2\rho c_s^2 V_{cr}}} \hbar c_s q$$

$D =$ deformation potential

($D_c \approx 8.6$ eV ; GaAs)

3.3 What to do with the electron-phonon interaction ?

The (quantum) treatment of the electron-phonon interaction depends primarily on the number of electron-phonon states that verify :

- (i) the energy resonance condition $\Delta E = E_1 - E_2 = \pm \hbar\omega_{\text{pho}}$
- (ii) the momentum conservation (when necessary)

where $E_{1,2}$ pertain to the electron energy spectrum and $\hbar\omega_{\text{pho}}$ a LO or LA phonon energy. This « joint » density of states plays a crucial role in the phenomena coupling the electron dynamics and the lattice vibrations. The two conditions above can :

- (A) be verified by a large number of states that form a dense (continuous) spectrum
- (B) be verified (or roughly verified) by a few electron and/or phonon states
- (C) never (even roughly) be verified

In the following, we discuss three optical experiments done in different semiconductor nanostructures aiming at probing primarily (i.e., to the lowest order in the dipolar coupling) the sole *electronic* excitations of the crystal. They will allow us to illustrate, for each one of the three types of joint density of states, how the electron-phonon interaction affects the states of the crystal and thus its optical response.

4. Optical signatures of the electron-phonon couplings

Owing to the important advances in the local spectroscopy techniques, semiconductor nanostructures have recently become model systems to study the coupling of localized electrons with phonons. These modeled semiconductor structures provide electronic confinement in one (quantum wells), two (quantum wires) or three (quantum dots) directions. (In any case, the electrons states spread over a large number of crystal cells and are well described within the

effective mass model.) In quantum dots, the low lying electronic energy spectrum is formed by a series of discrete levels. We will consider two distinct kinds of quantum dots, with different strengths for the localizing potential. For localization by defects near the interfaces of a quantum well, the ground bound state is separated from the excited bound states (or from the continuum of delocalized levels) by an energy that can be much greater than one acoustical phonon energy but generally much smaller than the optical phonon energy. In self-assembled quantum dots the confinement is much more important, and two bound states can differ by one (or more) optical phonon energy. Two different aspects of the electron-phonon interactions have been evidenced in these two types of quantum dots : the pseudo-polaron and the polaron states, as discussed in sections 4.2 and 4.3, respectively. In section 4.1 we discuss a more common aspect of the electron-phonon interaction, namely, the broadening of the free exciton states in a quantum well, due to irreversible exchanges with the lattice.

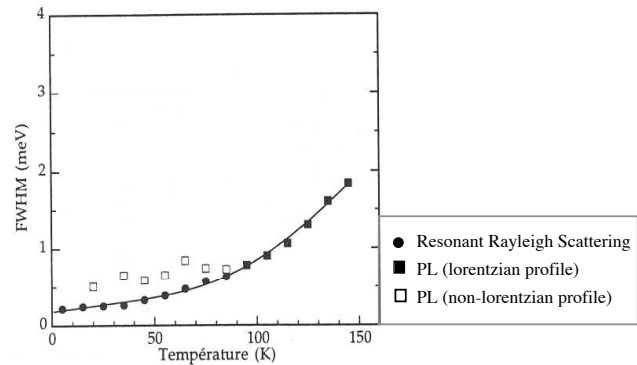
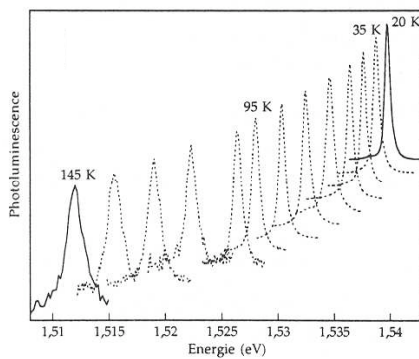
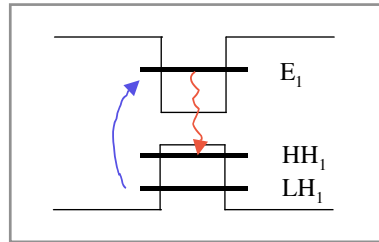
4.1 Homogenous broadening of quantum well free exciton states

The next figure shows the measured photoluminescence lines of a single GaAs-Ga(Al)As quantum well at different temperatures [GC]. In the experiments, the excitation is resonant with the first light-exciton transition and the luminescence comes from the ground heavy-exciton. The radiative line broadens as the temperature increases. The temperature dependence of the full width at half maximum (FWHM) is also reported in the figure. Different symbols are for different experiments that probe the homogeneous broadening of the excitons. The important point is that the homogeneous broadening has a finite small value at zero temperature, increases slightly (roughly linearly) when T increases up to about 50K and then starts increasing faster. The full line is the result of a fit

$$\Gamma(T) = \Gamma(0) + a T + b \exp\{ - \hbar\omega_{LO}/(k_B T) \}$$

Using light as a « probe » of the (weak) exciton-phonon coupling

T-dependent homogeneous broadening of Free QW Excitons



G. Cassabois (Ph D Thesis (Paris 1999))

This temperature dependence of the homogeneous broadening reflects the increasing interaction of the excitons with the acoustical and optical phonons as T increases. This can be understood by considering the coupling of low energy excitons to LA and LO phonons. The exciton-phonon interactions couple the ground ($K=0$) radiative state to a large number of excited ($K \neq 0$) non-radiative states. This introduces a finite lifetime for the radiative state, the inverse of which gives the homogeneous broadening measured in the experiments. Without going through the calculations, we can convince ourselves of this interpretation by recalling the temperature dependence of the phonon occupancies (Bose distribution) :

$$N_{\text{ph}}(\hbar\omega_{\text{ph}} ; T) = 1 / [\exp(\hbar\omega_{\text{ph}} / (k_{\text{B}}T)) - 1]$$

$$N_{\text{LA}}(\hbar\omega_{\text{LA}} ; T) \approx k_{\text{B}}T / \hbar\omega_{\text{LA}} \quad \text{for } T \geq 15 \text{ K}$$

$$N_{LO}(\hbar\omega_{LO}; T) \approx \exp(-\hbar\omega_{LO}/(k_B T)) \quad \text{for } T \ll 300 \text{ K}$$

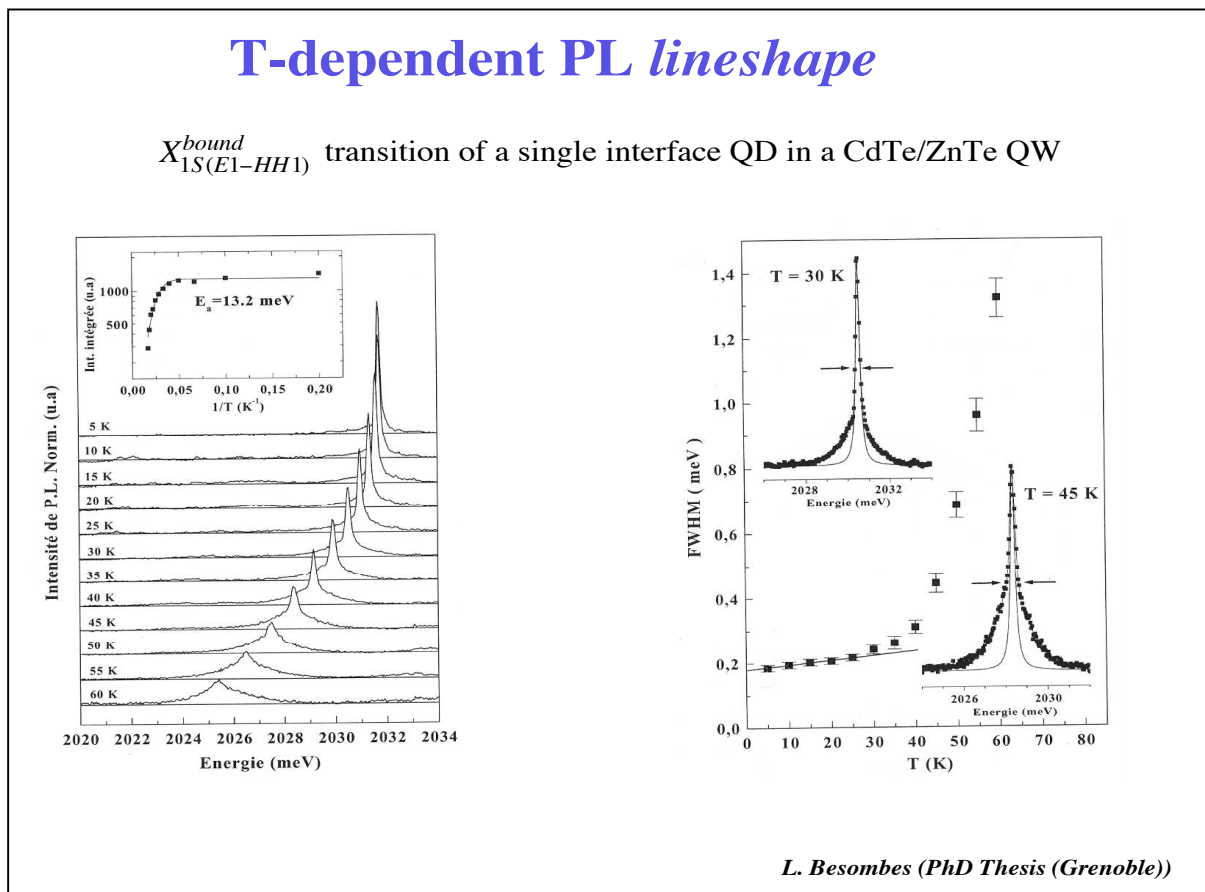
for the LA and LO phonons. The linear and exponential terms of the fit account thus respectively for the variations of the LA and LO phonons occupancies. The fit parameters a and b give information on the coupling strength, while the non-vanishing $\Gamma(0)$ points out the presence of a small amount of static disorder in the quantum well.

In the electron-lattice framework, the basis of decoupled states is spanned by the radiative ($K=0$) and non-radiative ($K \neq 0$) exciton states and by phonons states with different wavevectors and phonon occupancies. This situation corresponds to the first one (A) for the joint density of states, where the energy resonance is fulfilled by a large number of pairs of decoupled states. In this case, the electron-phonon coupling can be treated at the lowest (second) order : the Fermi golden rule leads to a finite lifetime and thus to a broadening for the radiative decoupled states (those with electronic part given by the $K=0$ exciton state, but with possibly different lattice states). It is worth to stress that one could (at least in principle) diagonalize the electron-phonon interaction within a truncated set of decoupled states to obtain an ensemble of mixed electron-phonon states. This would allow us to get a detailed description of the mixed states and also to evaluate different quantities, like the PL profile. This procedure would be, however, useless, owing to the weakness of the electron-phonon coupling and to the joint density of states involved (a dense continuum).

4.2 Excitons localized in weakly confining quantum dots.

First of all, a few words about the weakly confining quantum dots. Depending on the growth conditions, during the growth of a quantum well a significant amount of defects may appear near the quantum well interfaces. These defects break the translational invariance in the layer plane and leads to the appearance of electronic states that are spatially localized around the defect region. Standard macroscopic optics is unable to study the properties of a single

localized state, since its localization length is generally too small (typically 100 Å) and the defect density is generally too high (typically 10^{10} cm^{-2}). The luminescence line is inhomogeneously broadened. To overcome this difficulty, one combines spatial and spectral filtering techniques, as follows. Lithography techniques permit to isolate a small hole on the sample surface (typically $1 \mu\text{m}^2$). The luminescence spectrum measured from apertures with decreasing size evolves from a broad feature to a small number of thin lines. Different lines are hopefully associated to different defects inside the aperture : these are both spatially and spectrally separated (the probability of having two identical defects within the same aperture is very weak). Thus, one spectrally isolated luminescence line inside a small aperture corresponds to the radiative recombination of excitons bound to a particular interface defect.



The figure above shows the luminescence (PL) spectrum from one of these localized exciton states for different temperatures, for a II-VI (CdTe/ZnTe)

quantum well [LB]. The low temperature PL spectrum displays a dominant lorentzian profile with small wings. The central line decreases in intensity while the wings increase in intensity as T increases. Finally, the PL profile becomes a single broad line, which starts losing intensity at high temperatures. The temperature dependence of the FWHM is also shown in the figure. We observe again that the measured homogeneous broadening increases initially slightly with T and then presents a steep increase for $T > 40\text{K}$. One can ask oneself whether the temperature dependent broadening cannot be associated to irreversible absorption processes, like in the case of free excitons discussed above. However, contrarily to the case of free excitons, the variation of the FWHM with T is clearly related to a variation of the *profile* of the PL line. This particular *profile* variation excludes any interpretation in terms of a simple level lifetime effect, like irreversible absorption processes that promote the bound excitons into the delocalized quantum well states (even if these « escape » processes are most probably responsible for the decrease of the integrated PL intensity with temperature (see inset of the figure)). Thus, the explanation of these important spectral effects should not be related to the (weak) irreversible couplings, which contribute with an (small) imaginary correction to the exciton energy, but rather to processes that contribute with a real correction to the bound exciton state.

To understand these results, we must initially recall that the exciton-defect binding energy is larger than both the typical LA phonon energy and the measured PL broadening (\approx a few meV's). In this case, the bound state appears as one isolated electronic state, for which one could expect the diagonal (in the static lattice model) approximation holds. The radiative transition should thus involve the initial $|i\rangle$ and final $|f\rangle$ « mixed » states :

$$|i\rangle = |X^*\rangle |L_i\rangle$$

$$|f\rangle = |0\rangle |L_f\rangle$$

where $|X^*\rangle$ is the bound exciton state, $|0\rangle$ the ground electronic state, $|L_i\rangle$ and $|L_f\rangle$ respectively the lattice initial and final states. These are said to represent « pseudo »-polaron states, since the electronic and lattice degrees of freedom are decoupled, but the lattice states $|L_i\rangle$ and $|L_f\rangle$ corresponding respectively to the excited ($|X^*\rangle$) and ground ($|0\rangle$) electronic states may be different. The probability amplitude for radiative recombination is accordingly proportional to

$$A_{f,i} = \langle 0 | V_{e-p} | X^* \rangle \langle L_f | L_i \rangle$$

where V_{e-p} is the exciton-photon interaction (considered as a small perturbation). The second term represents the amplitude overlap for the lattice atoms motions in the initial and final states, and are responsible for the particular line profile of the PL line [H&R]. Indeed, the emitted photon has energy :

$$\begin{aligned} \hbar\omega_{\text{photon}} &= E(|X^*\rangle) - E(|0\rangle) + [E(|L_i\rangle) - E(|L_f\rangle)] \\ &= \Delta E_{\text{exciton}} + [\Delta E_{\text{phonon}}] \end{aligned}$$

The first term is the energy of the zero-phonon line. The second term is responsible for the wings of the PL. Its interpretation is straightforward : because of the exciton-phonon interaction, the lattice can change its state whenever the electronic cloud changes its state (here, because of the radiative recombination). And, as always with the electron-phonon interaction, the efficiency of the coupling increases with increasing temperature, so that the n-phonon processes (variation of the lattice state by n phonons, with $n = \pm 1, \pm 2, \dots$) increases at the expense of the zero-phonon line (recombination with unchanged lattice state). Finally, note that this situation corresponds to the third one (C) for the joint density of states, for which the relevant decoupled states $|i\rangle$ and $|f\rangle$ are highly non-resonant and well separated from other decoupled states (in particular the ones involving dissociated excitons).

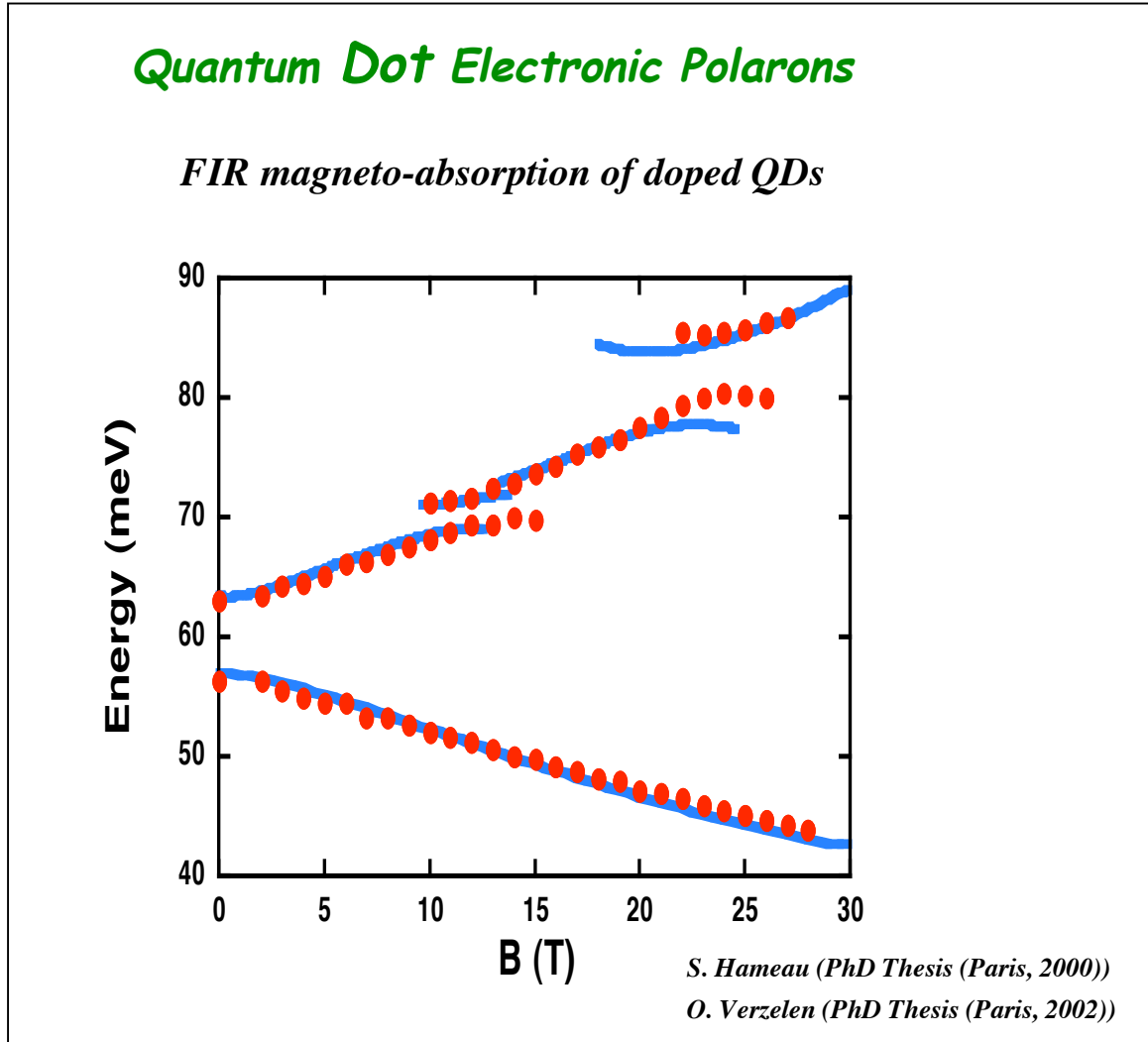
4.3 Electrons in strongly confining quantum dots.

First of all, a few words about the strongly confining quantum dots we shall be interested in. The so-called self-assembled quantum dots grow

spontaneously when one deposits InAs on the top of a GaAs surface. The dots are independent (low areal density) and resemble islands of InAs-based materials buried on a GaAs matrix. These nanometric objects display a rough cylindrical symmetry around the growth "z" direction and are modeled by lens-like or truncated cones. They usually bind several electron (and hole) levels, which are commonly labeled S, $P_{\pm 1}$, $D_{\pm 2}$, ... according to their angular momentum component l_z along the z direction : $l_z = 0$ for S states, ± 1 for P states, ... The important characteristics of the bound electron levels are : (i) their wavefunctions are spatially strongly localized within the dot ; (ii) the typical energy separation among the different levels is \approx tens meV. Finally, one is able to engineer an ensemble of *populated* dots, each containing on the average one electron in its ground level, by suitably doping the GaAs barrier nearby the dot plane. In the following we shall focus on the optical absorption of such an ensemble of populated independent quantum dots. Since the energy difference between the S and P shells lye on the 30 - 70 meV, the intra-dot absorption is in the FIR region.

We show in the next figure the FIR magnetoabsorption spectrum of an ensemble of doped dots (the field direction is along z ; [SH]). Different features deserve attention. Firstly, we observe two zero-field absorption lines, while only one would be expected for a cylindrical dot. Actually, as corroborated by different studies, the dots present a small in-plane anisotropy, which couples the P_+ and P_- states and leads to the two zero-field P-like features. Owing to the Zeeman coupling for the P levels, and by analogy with the situation in one-electron atoms, one would expect two "mirror" branches for the magnetoabsorption : one increasing ($S \rightarrow P_+$) and the other decreasing ($S \rightarrow P_-$) in energy. Surprisingly, we observe important deviations with respect to this "anisotropic-atom" prediction : (i) the presence of anticrossings in the upper dispersion and (ii) the reduced field variation of the lower branch. As described in the following, the observed deviations illustrate the importance of the

electron-phonon interactions in these systems, and thus the fact that a doped quantum dot *does not* behaves as an isolated, "atomic"-like system, but displays clear-cut features related to its underlying crystalline nature.



The key to understand these experimental facts is the electron-phonon (Fröhlich) interaction. We shall not detail the calculations, but only stress that a satisfactory explanation the experiments (bold lines in the figure) can only be obtained within the strong-coupling regime for electrons and optical phonons. In this case, the electrons and lattice vibrations are strongly mixed and the pertinent states to describe the dot properties are *polarons*. A strong indication is the fact that the deviations of the lower branch occurs when it approaches the 1-LO phonon energy (≈ 36 meV), while the two anti-crossings in the upper

branch rise for transitions around 2-LO phonons and when the lower and upper branch differ by roughly 1-LO phonon. The strong-coupling regime results from the association of two main facts : the discreteness of the electron levels and the monochromaticity of the optical vibrations. It illustrates the second situation (B) for the joint density of states discussed above. Indeed, it has been shown that the low laying dot eigenstates are entanglements of S-like and P-like electron states with a few LO-related lattice vibrations [OV].

All the results of section 4.3 are more lengthily discussed in the next chapter.

5. Conclusions

We have reviewed different aspects of the electron-phonon interaction in bulk and modeled semiconductors. The irreversible, pseudo-polaron and true polaron regimes were illustrated in the frame of optical experiments done on quantum wells and quantum dots. These experiments, primarily aimed at probing the electronic (interband or intra-band) transitions, show important features that cannot be understood by assuming that the electronic and lattice states are independent. They also clearly demonstrate that the electron-phonon interactions cannot always be treated within the lowest order, but that a complete diagonalization within an appropriate basis is necessary when dealing with electrons (or electron-hole pairs) bound in quantum dots. Finally, the specificity of quantum dots is that the energy separation between the confined electronic levels can be made to become resonant (either by adjusting the growth parameters or by the application of external fields) with the characteristic phonon energies.

6. Acknowledgements

The author thanks many discussions with G. Bastard, G. Cassabois, Y. Guldner, S. Hameau and O. Verzelen. The LPA-ENS is "Laboratoire Associé

au CNRS (UMR8551) et aux Universités Paris 6 et Paris 7". This work has been partly supported by the EU project SQID : IST-1999-11311.

7. References

- [AD] A. Davidov, *Théorie du Solide* (Editions Mir, Moscou, 1980)
- [A&M] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Harcourt College, 1976)
- [B&H] M. Born and K. Huang, *Dynamical Theory of Crystal Lattices* (Claredon Press, Oxford, 1954)
- [Y&C] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors – Physics and Materials Properties* (Springer, Berlin, 1999)
- [CK1] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics* (Wiley, New York, 1995)
- [CK2] C. Kittel, *Quantum Theory of Solids* (Wiley, New York, 1987)
- [FS] F. Seitz, *Théorie Moderne des Solides* (Masson et Cie, Paris, 1949)
- [GC] G. Cassabois, *Relaxation de coherence dans des hétérostructures de semiconducteurs* (Thèse de Dà doctorat de l'Université Paris VI, Paris, 1999)
- [LB] L. Besombes, *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteur II-VI* (Thèse de Doctorat de l'Université Grenoble 1, Grenoble)
- [SH] S. Hameau, *Systèmes d'électrons dans les nanostructures semi-conductrices à confinement quantique dans 2 ou 3 directions* (Thèse de Dà doctorat de l'Université Paris VI, Paris, 2000)
- [GC] O. Verzelen, *Interaction electron-phonon LO dans les boîte quantiques d'InAs/GaAs* (Thèse de Dà doctorat de l'Université Paris VI, Paris, 2002)

CHAPITRE 2A

Etats polarons
des
boîtes quantiques auto-assemblées

*Electron - LO phonon coupling in
GaAs/InAs Quantum Dots*

or

*Are Quantum Dots
« artificial atoms » ?*

 **Magneto-transmission experiments**

 **Polarons levels calculations**

Le matériel de ce chapitre a été les séries de cours avancés que j'ai donnés lors de deux écoles de physique des nanostructures :

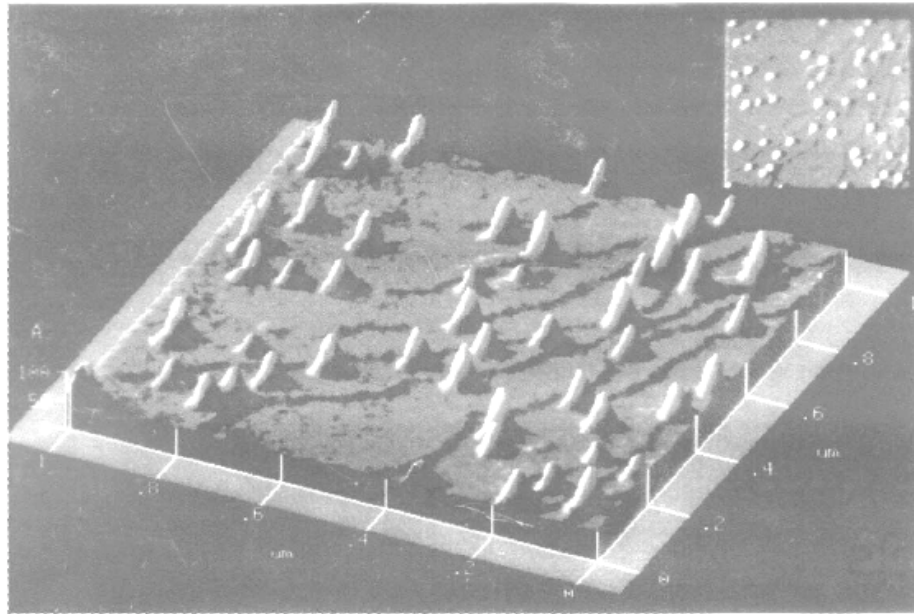
(1) « Electron-phonon interactions in semiconductors : from bulk material to quantum dots », "XXXI International School on the Physics of Semiconducting compounds" - 7-14/06/2002, Jaszowiec - Pologne

(2) « Electron-phonon coupling in GaAs/InAs Quantum dots »

"11th Brazilian Workshop on Semiconductor Physics (BWSP2003) " – 9-14/03/2003, Fortaleza (CE) – Brésil

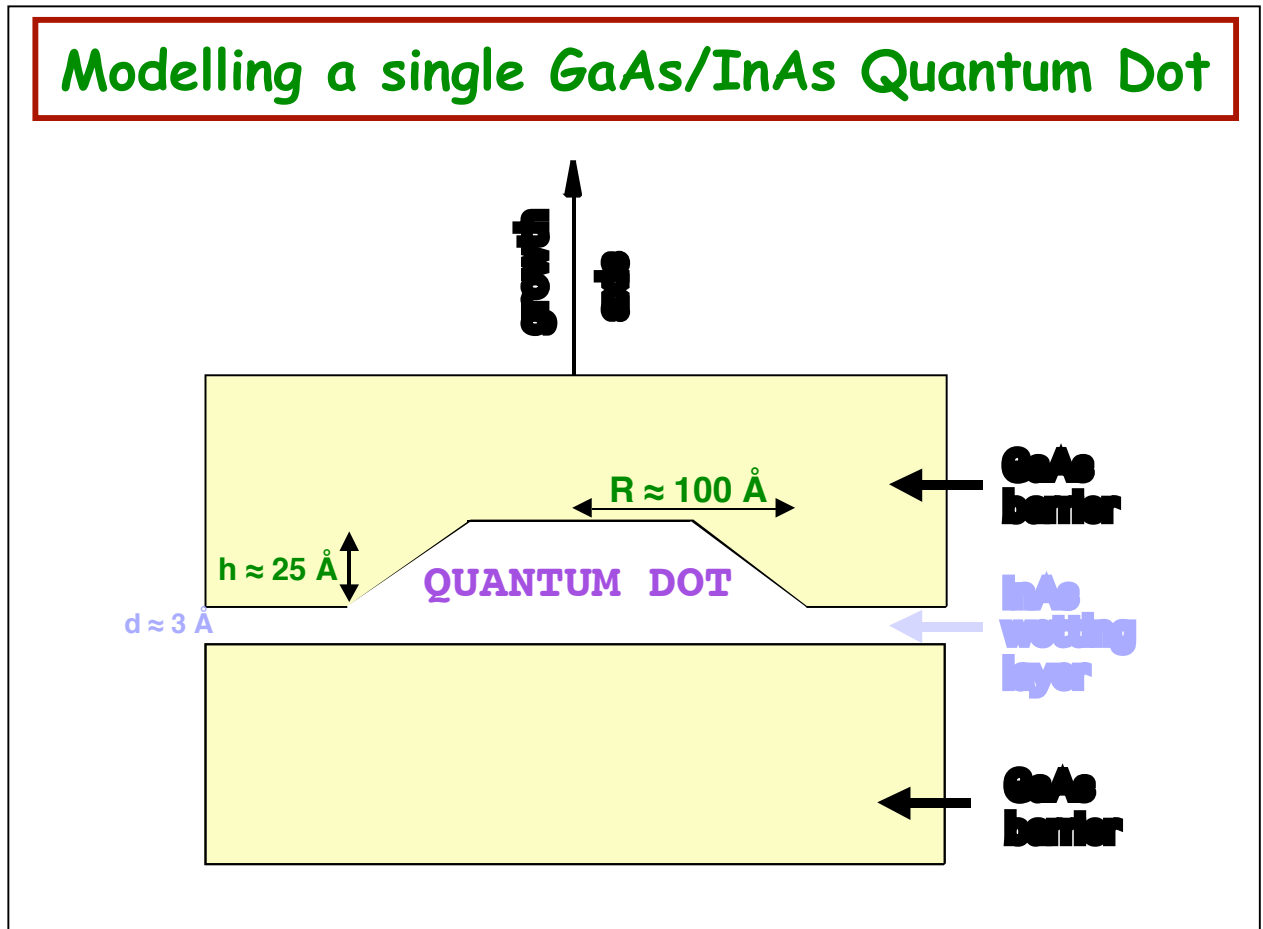
Ces cours visaient à présenter d'une manière pédagogique les principaux aspects du problème du couplage des électrons confinés dans une boîte quantique de semiconducteurs avec les vibrations optiques du réseau cristallin. Le matériel a été remanié pour les besoins de cette Habilitation à Diriger des Recherches, mais garde, je l'espère, son objectif originel.

Self-Organized GaAs/InAs Quantum Dots



Les boîtes quantiques sont obtenues par la méthode de croissance « auto-organisée ». Dans ce cas, on commence par faire pousser de l'InAs sur un substrat de GaAs. Malgré la forte différence de paramètre de maille ($\Delta a/a_{\text{GaAs}} = 7\%$, où $a_{\text{GaAs}} = 5.65 \text{ \AA}$ et $a_{\text{InAs}} = 6.06 \text{ \AA}$), la croissance est initialement bi-dimensionnelle, menant à la formation d'une fine couche de InAs. Toutefois, au-delà d'une épaisseur nominale critique (≈ 0.7 monocouches), l'énergie élastique cumulée devient trop importante. Il en résulte que la croissance change de nature et devient tri-dimensionnelle, menant à la formation d'îlots. La figure montre une image AFM obtenue in-situ après formation des îlots et avant de les « enterrer » avec du GaAs. On en tire une distribution inhomogène d'îlots, avec une densité moyenne de $10^{10}/\text{cm}^2$. Il en résulte que les îlots sont en moyenne bien séparés les uns des autres ; dans la suite on les traitera comme isolés.

L'image précédente ne permet pas d'avoir des informations précises sur la forme des îlots. Toutefois, on en tire que ces objets sont très plats (hauteur très inférieure à l'extension à la base). Nous les modéliserons par des cônes (tronqués ou non), de hauteur h et rayon R à la base (haut de la couche de mouillage) et angle d'inclinaison α , comme sur la figure suivante :

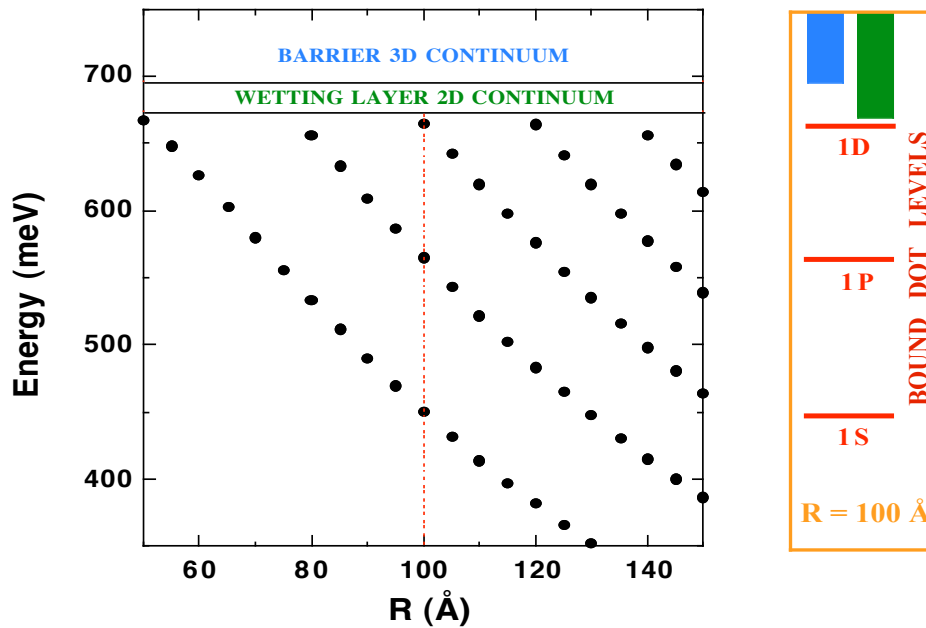


La modélisation des boîtes quantiques est très complexe, pour plusieurs raisons. Tout d'abord à cause du manque de données précises sur ces objets. Outre le fait que les études de caractérisation sont ou bien destructives ou bien souvent faites sur des échantillons différents de ceux que l'on étudie expérimentalement, il est également bien acquis que les caractéristiques des boîtes dépendent de manière très importante des paramètres de croissance.

Ainsi, les boîtes sont « plus grandes » pour des alliages Ga(In)As et « plus petites » lorsque l'on utilise du InAs. De plus, des effets de diffusion (le In est léger et tend à « monter » lors de la croissance) engendrent un profil non-trivial de composition à l'intérieur des îlots. D'autres paramètres jouent également un rôle important, tel que la température du substrat, ... Ainsi, un échantillon donné présente un ensemble inhomogène de boîtes, dont les caractéristiques moyennes sont fonctions des paramètres de croissance. Des études récentes (en particulier celles effectuées sur des boîtes quantiques uniques) montrent qu'une connaissance précise de ces différents paramètres (gradient de composition, état de tension du réseau, forme géométrique, ...) peut s'avérer indispensable pour la compréhension de la *structure fine* des états électroniques des boîtes quantiques de semiconducteurs.

Toutefois, l'effet le plus important introduit par la formation des îlots est l'apparition d'états quantiques confinés spatialement. Cela est dû au fait que le InAs est énergétiquement plus attractif pour les électrons, par rapport au GaAs. Ce fait a été vérifié expérimentalement dès les premiers échantillons contenant des îlots quantiques. L'effet de confinement quantique ressort d'une analyse très simple de ces objets, comme on en trouverait dans un manuel de mécanique quantique : le potentiel agissant sur les porteurs est constant par morceaux, avec une valeur dans les régions de la boîte et sa couche de mouillage (fine couche sur laquelle repose la boîte quantique) une valeur supérieure dans le GaAs qui les entoure.

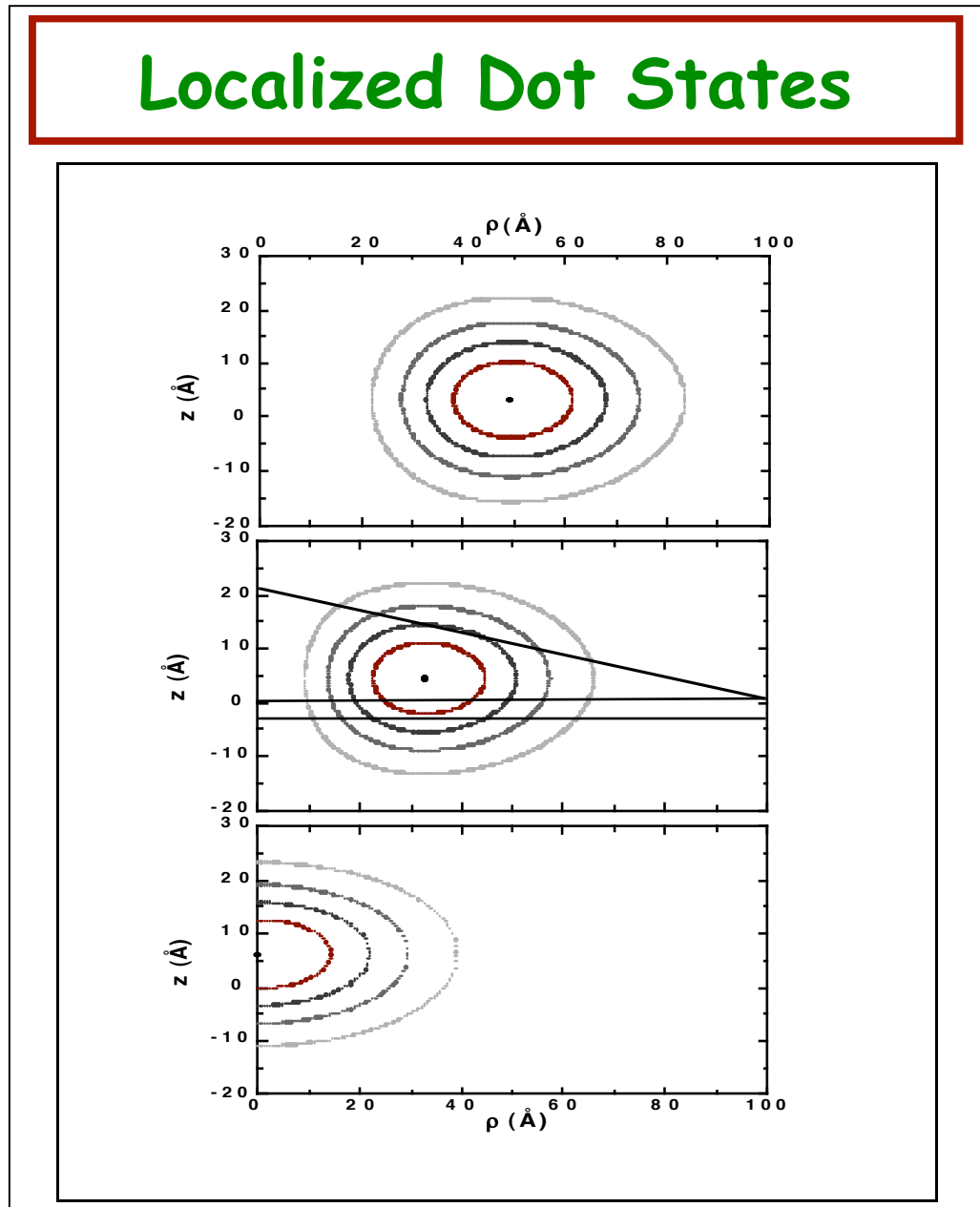
Energy Levels of a single QD



Cette figure montre la variation des niveaux liés d'une boîte InAs/GaAs, calculés à partir d'une méthode de variation. La symétrie de révolution autour de l'axe de croissance passant par le centre de la boîte permet de classer les états par la projection suivant cet axe du moment orbital. Ainsi, on aura des états S ($m_z=0$) ; P_{\pm} ($m_z = \pm 1$), ... Les états de $|m_z| \geq 1$ sont deux fois dégénérés dans ce modèle. De plus, comme la boîte est plate, dans le cas général seul un état de chaque symétrie est lié (1S, $1P_{\pm}$, ...)... On montre sur la figure les énergies des premiers niveaux liés de type 1R, où $R = S, P_{\pm}, D_{\pm}, \dots$ comme fonction du rayon de la boîte modélisée par un cône non tronqué avec $\alpha = 12^\circ$ et potentiel de confinement de 697 meV (le potentiel dans le InAs est pris égal à zéro) et masse des porteurs $m^* = 0.07 m_0$ (m_0 est la masse nue de l'électron). On observe un nombre croissant d'états liés lorsque les dimensions de la boîte grandissent.

Les bandes continues avec seuil vers 670 meV et à $E = 0$ correspondent respectivement aux états du continuum de la couche de mouillage (continuum 2D) et de la barrière (3D).

La figure suivante montre les fonctions d'onde (courbes d'iso-probabilité) associées aux trois premiers états liés (symétries S, P et D) pour une boîte non-tronquée de $R = 100 \text{ \AA}$ (schématisée sur le panneau central).

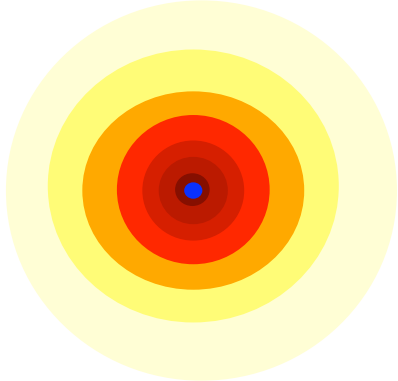
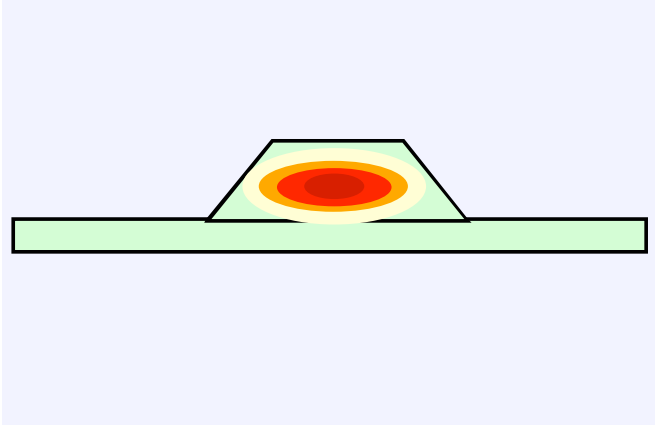


On note que les états de plus basse énergie sont très fortement localisés dans région de la boîte.

La présence d'un spectre discret basse énergie, auquel est associé des fonctions d'onde fortement localisées, est à l'origine de l'image « macro-atome artificiel », très souvent employée pour désigner ces nano-objets. Cette

association est à son tour à l'origine de différentes propositions d'utilisation des boîtes quantiques de semiconducteurs, dans des domaines aussi variés que celui de l'information quantique et du contrôle cohérent (par moyen optiques) de ses états quantiques.

The Macro-Atom picture



In a Semiconductor Quantum Dot the electrons are confined in three dimensions, just like bound electrons in monovalent atoms

*May we handle the dots eigenstates in much the same way as in atomic physics ?
(\Rightarrow *intrication, q-bit, solid-state implementation of quantum calculation devices ...*)*

Dans la suite, on discutera des expériences qui mettent en échec cette image (tout au moins dans sa forme « atomique » la plus élémentaire). Pour cela, on discutera le résultat d'une série d'expériences de magnéto-absorption dans l'infra-rouge lointain, réalisées sur différents ensembles de boîtes quantiques contenant (en moyenne) chacune un électron. On verra que les prévisions du modèle atomique sont insuffisantes pour expliquer les résultats expérimentaux, lesquels font (re)apparaître de manière frappante l'existence d'un réseau cristallin sous-jacent pour ces objets semiconducteurs.

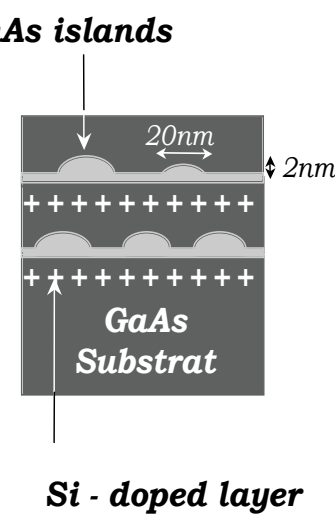
La figure suivante présente de façon schématique l'échantillon type utilisé par Hameau et al (1999) pour les expériences de magnéto-transmission.

FIR Spectroscopy of doped QDs

(1) 30 layers of stacked QDs

(2) ~ 1 *électron per dot*

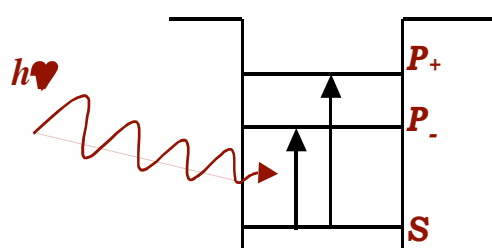
(3) Probing the $S \rightarrow P$ transitions vs B :



InAs islands

Si - doped layer

GaAs Substrat



$20 < h\nu < 90 \text{ meV}$

$(14 < \lambda < 60 \mu\text{m})$

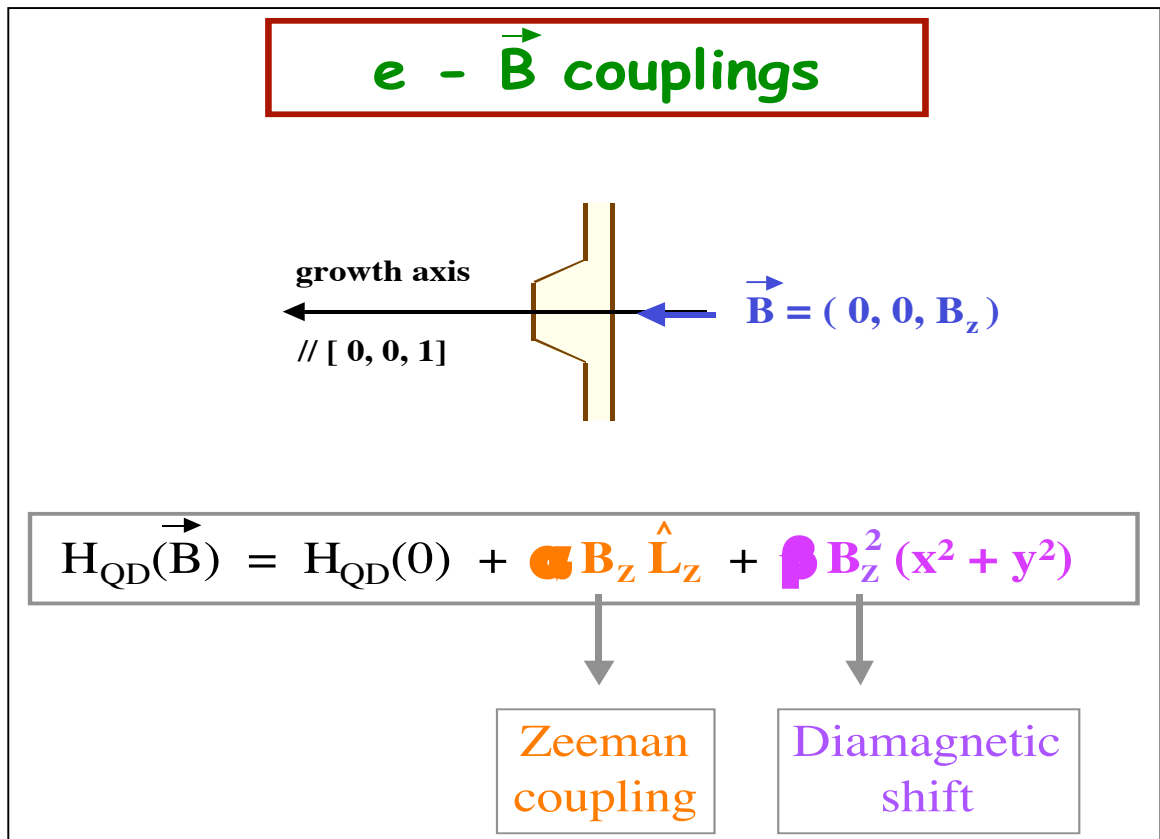
$0 < B < 28 \text{ T}$

Il s'agit de mesurer l'absorption (plus précisément, la transmission), d'un échantillon contenant quelques dizaines (pour des raisons de signal) de plans de boîtes quantiques. Le dopage des boîtes résulte du transfert des électrons des donneurs placés dans de plans de dopage au voisinage de chaque plan de boîte.

Comme on verra plus loin, l'énergie de la transition se trouve dans l'intervalle 20 – 90 meV, et donc dans l'infrarouge lointain (FIR).

Un important atout de ces expériences est la possibilité de varier cette transmission par l'application d'un champ magnétique constant parallèle à l'axe de croissance.

Il faut donc pouvoir évaluer l'effet du champ magnétique B_z sur les états confinés des boîtes quantiques. Comme en physique atomique, on a deux couplages agissant sur le mouvement orbital: Zeeman (linéaire en B_z) et diamagnétique (quadratique en B_z ; voir figure).



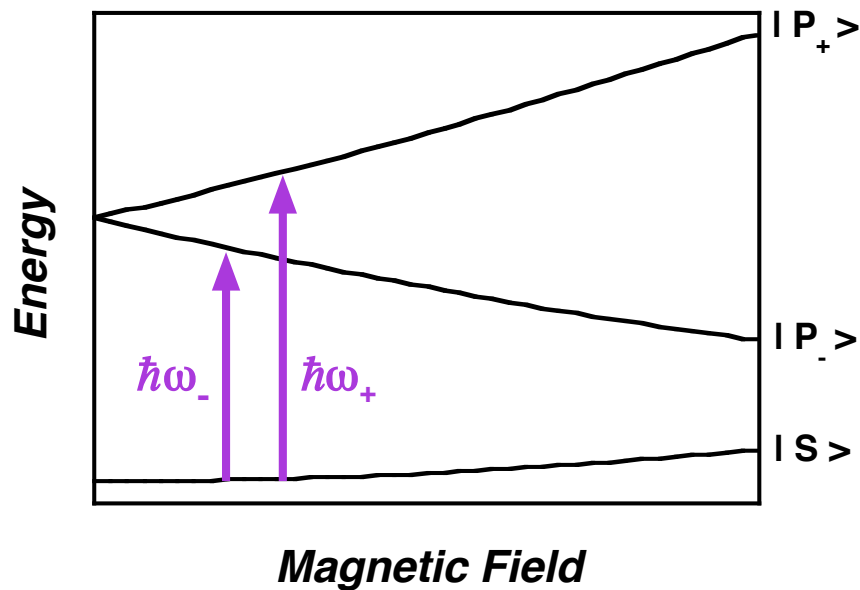
Le terme linéaire est indépendant du confinement des états, tandis que le décalage quadratique est, à l'ordre le plus bas, proportionnel à l'extension dans le plan (x,y) de la fonction d'onde localisée. Rappelons que celle-ci est, à cause du fort confinement, essentiellement donnée par le rayon de la boîte, lequel est sensiblement inférieur au rayon cyclotron de l'électron dans le domaine de champ exploré ($B_z < 30\text{T}$). Le décalage diamagnétique est donc très faible dans les boîtes quantiques.

A l'équilibre thermodynamique, les électrons se trouvent dans l'état fondamental, de type S, qui présente une variation quadratique (faible) avec B_z . Les états excités (vides) sondés par la lumière sont de type P et présentent une forte variation Zeeman en champ, comme on verra par la suite.

Ces résultats sont présentés de façon schématique sur la figure suivante :

Previsions of the « artificial atom » model

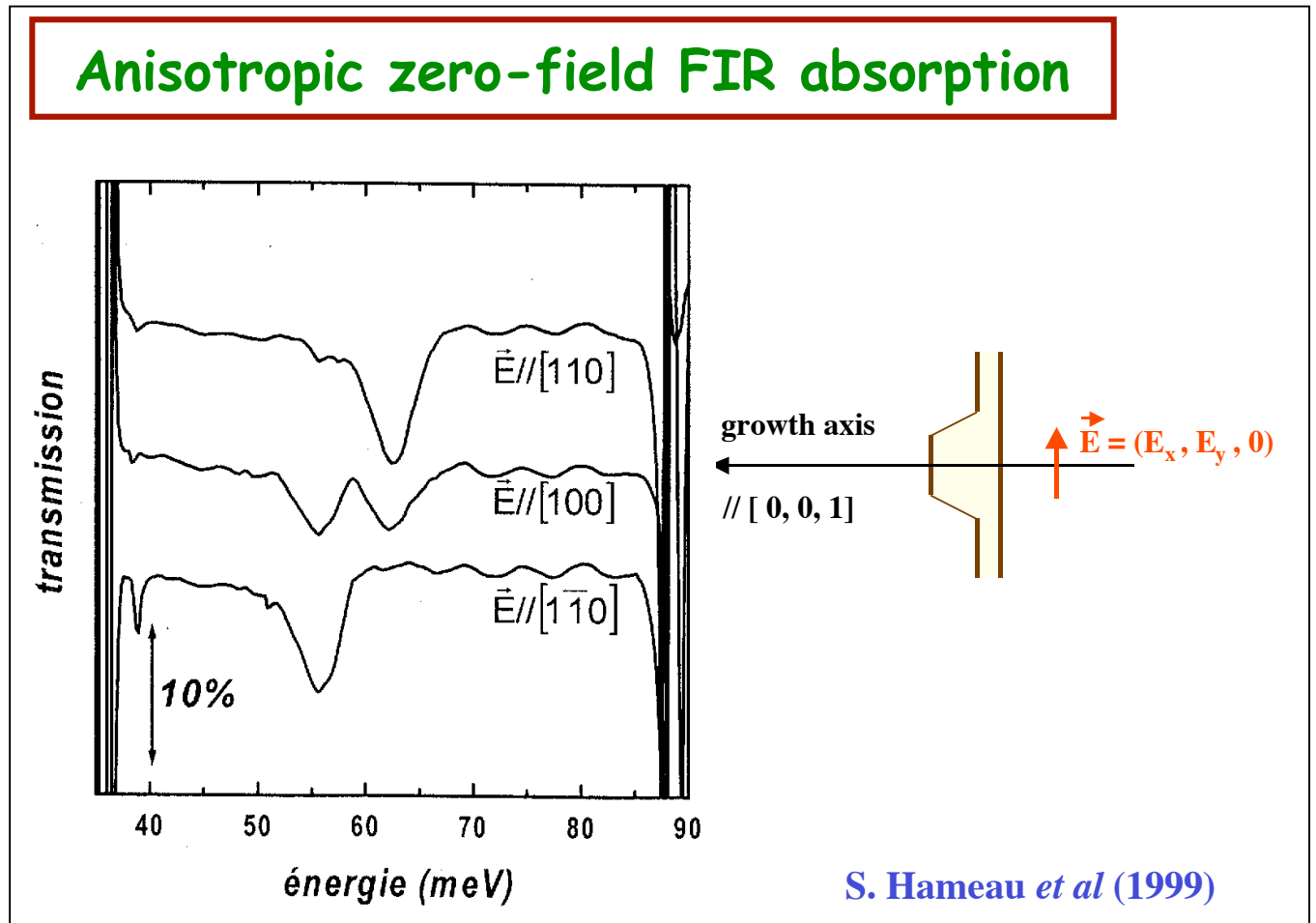
$$\hbar\omega_{\pm}(B) = \hbar\omega_{\pm}(0) \pm \frac{1}{2} \hbar\omega_c + \gamma B^2$$



Dans cette figure, $\hbar\omega(B)$ est l'énergie de la transition en présence du champ ($B=B_z$), ω_c est la fréquence cyclotron et $\gamma = \gamma_P - \gamma_S$ prend en compte les petits décalages diamagnétiques des états P et S.

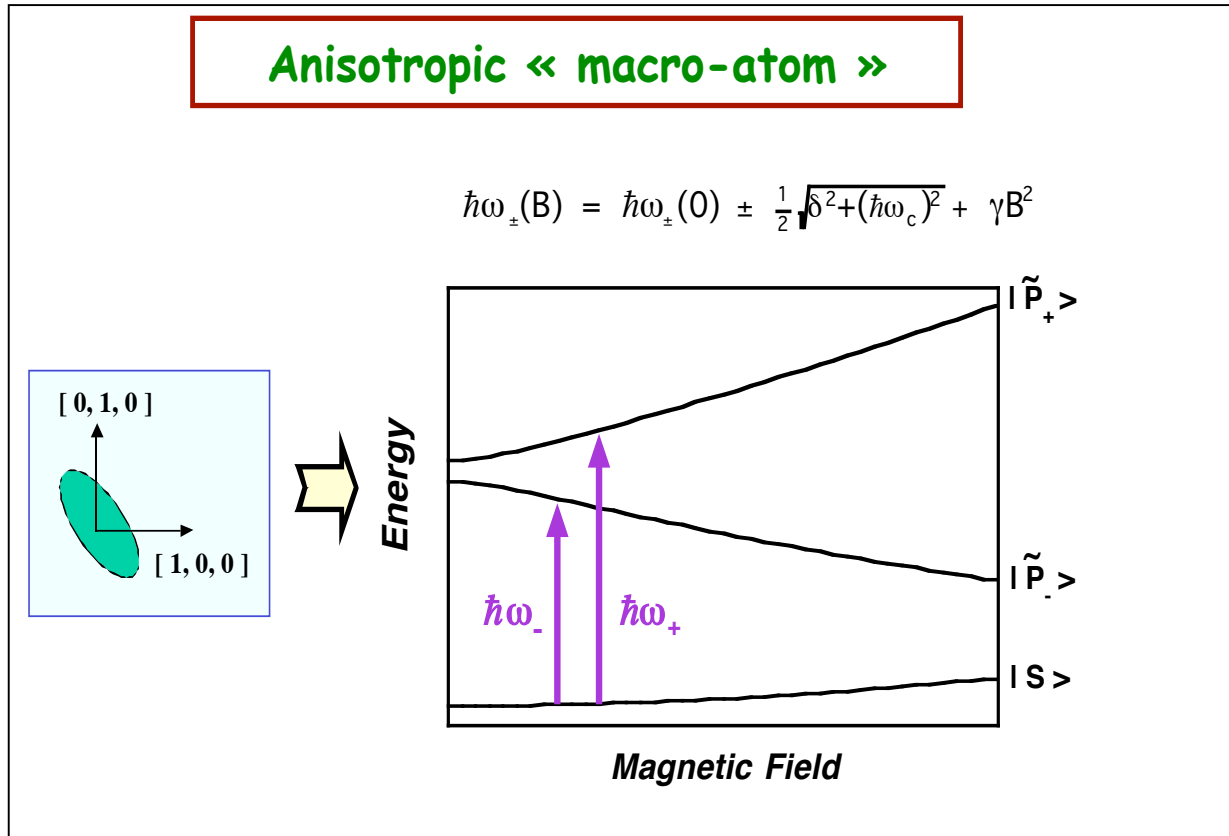
Ce schéma contient l'essentiel des prévisions du modèle d'atome artificiel appliqué à une boîte quantique, à savoir, l'existence d'une raie unique à $B_z = 0$, associée aux transitions vers les deux états dégénérés P_{\pm} , qui se scinde en deux pour $B_z \neq 0$, engendrant une transition « montante » et une « descendante » comme fonction du champ. De plus, si l'on néglige le faible terme quadratique, les énergies de ces deux raies sont miroir l'une de l'autre (par rapport à $\hbar\omega(0)$).

La figure suivante présente les résultats obtenus à champ nul avec de la lumière se propageant le long de l'axe de croissance et polarisée linéairement :



On observe une forte dépendance des transitions avec la direction de la polarisation linéaire de la lumière. Cela implique que les deux axes cristallographiques $[1,1,0]$ et $[1,-1,0]$ ne sont pas équivalents. Ce résultat est inexplicable dans le cadre du modèle précédent pour une boîte à symétrie de révolution autour de l'axe de croissance. Cette anisotropie peut avoir différentes origines : (i) au niveau « atomique », comme lorsque l'on considère les orbitales du réseau de la blende de zinc sous-jacent (ce réseau présente des propriétés isotropes seulement dans la limite d'un milieu massif et non-contraint ; or, ces deux ingrédients sont absents dans une boîte quantique) ; (ii) au niveau

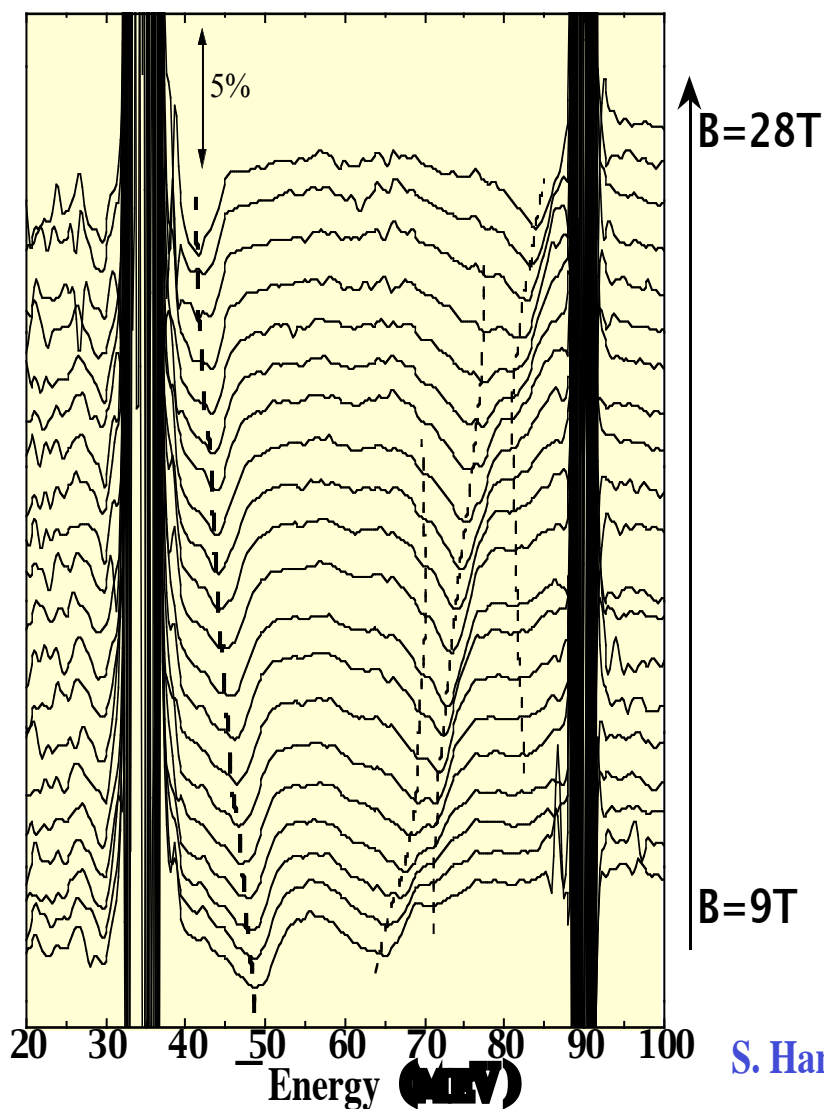
« enveloppe », comme une anisotropie de forme pour le potentiel de confinement dans le plan (x,y) (anisotropie « géométrique » ou « non-axial »). Dans la suite, on se placera dans le cadre d'un modèle de boîte anisotrope, comme sur le schéma suivant pour une boîte conique à base « allongée » :



Cette anisotropie est de symétrie « D » par rapport à l'axe de croissance de la boîte (tout comme celle « atomique »). Les deux raies expérimentales sont séparées de quelques meV, valeur bien inférieure à la distance entre les couches S et P. Cela nous permet un traitement perturbatif de l'anisotropie de forme. A l'ordre le plus bas, celle-ci couple les états P_+ et P_- , mais n'affecte pas l'état fondamental de type S. Les nouveaux états $|P_X\rangle$ et $|P_Y\rangle$ issus de la diagonalisation de la perturbation à l'intérieur du sous-espace $|P_{\pm}\rangle$ reflètent la situation d'anisotropie souhaitée (δ sur la figure est le couplage anisotrope et X et Y les axes de l'ellipse). En présence d'un champ magnétique, on obtient à nouveau les branches « montante » ($|\tilde{P}_+\rangle$) et « descendante » ($|\tilde{P}_-\rangle$), mais la variation à faible champ est quadratique pour une boîte à base allongée.

La figure suivante montre les spectres de transmission obtenus pour des valeurs différentes du champ magnétique (entre 9 et 28 T). On observe notamment les variations des minima de transmission (flanqués par l'absorption intense du GaAs autour de l'énergie de 36 meV du phonon optique massif et par une bande autour de 90 meV introduite par le dispositif expérimental).

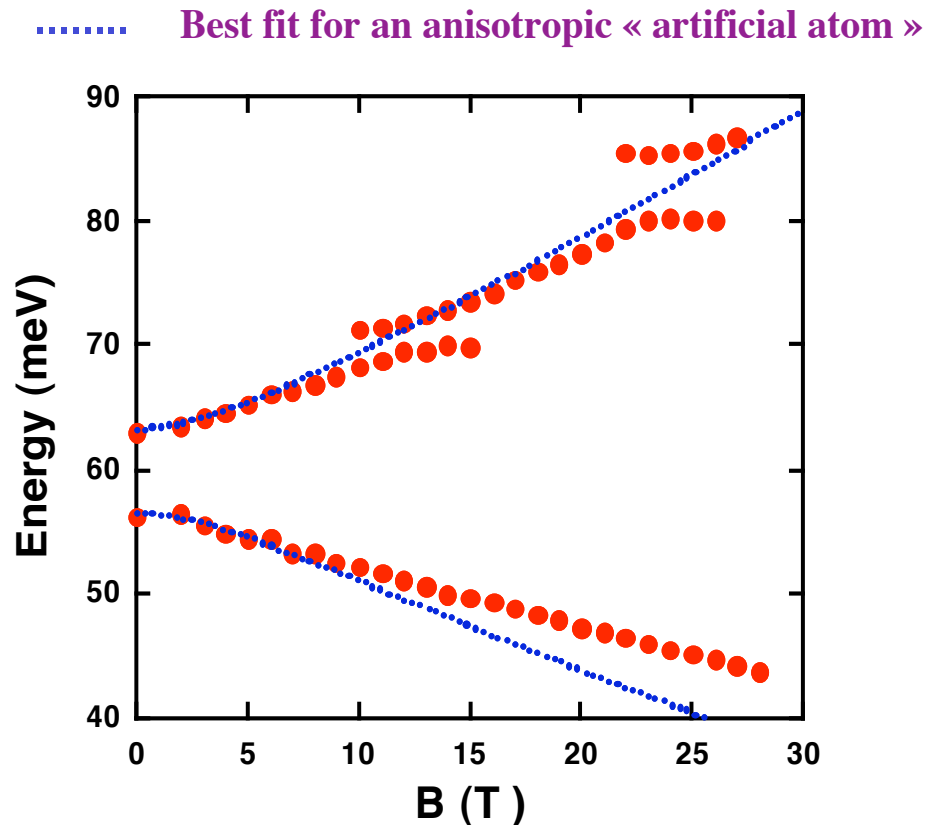
FIR magneto-transmission spectra



S. Hameau *et al* (1999)

Les points sur figure suivante donnent les variations des minima de transmission comme fonction du champ appliqué :

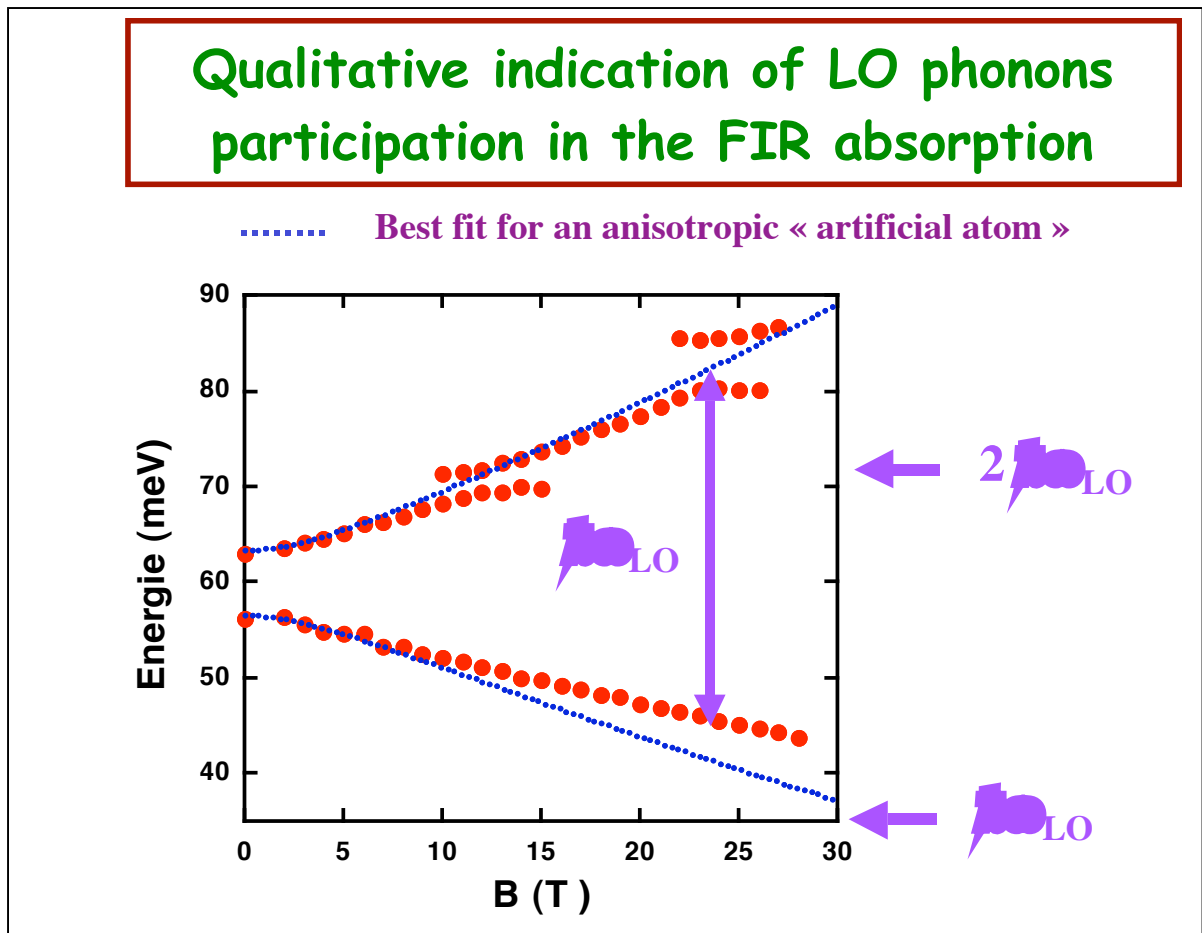
Breakdown of the « artificial atom » model



La courbe en pointillés représente le meilleur ajustement à partir de l'équation issue du modèle de macro-atome anisotrope (voir la figure correspondante). On constate ainsi l'existence de deux branches, mais avec des fortes déviations par rapport au modèle électronique :

- (i) la présence de forts anticroisements sur la branche montante ;
- (ii) l'absence d'effet miroir pour les variations (moyennes) des deux branches en champ, avec un « alourdissement » important de la branche descendante.

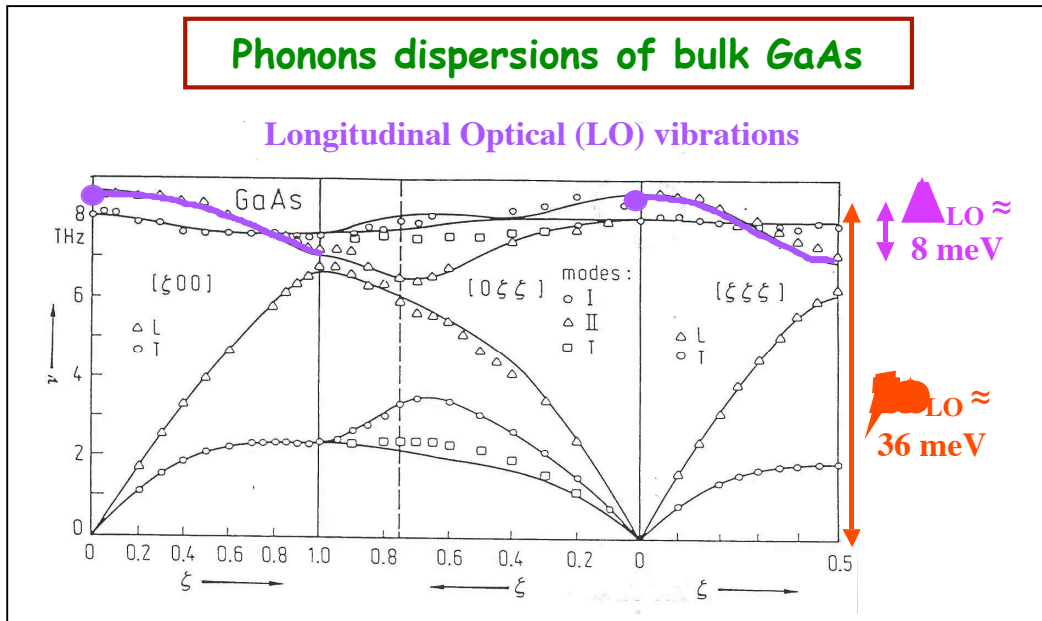
Une première piste (purement indicative à ce niveau de l'analyse) de l'origine des déviations observées est présentée sur la figure suivante :



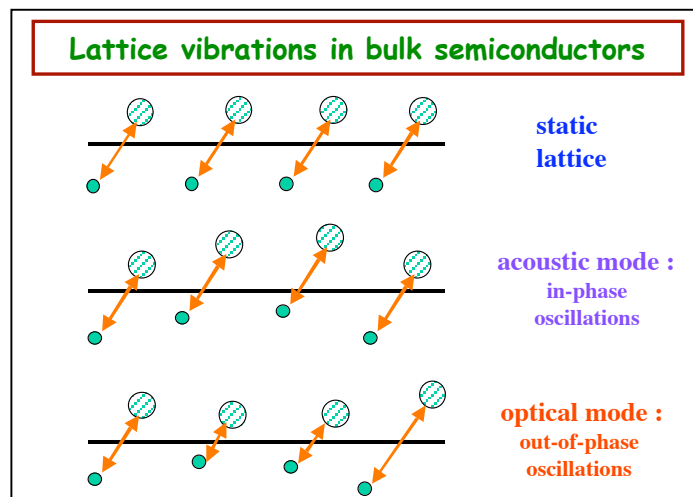
On constate que l'énergie $\hbar\omega_{LO}$ (≈ 36 meV) caractéristique des phonons optiques du GaAs massif (ou InAs contraint) apparaît de façon récurrente dans les résultats expérimentaux, par rapport aux déviations mentionnées. Ainsi, la branche du bas dévie de manière considérable de la courbe électronique lorsque l'énergie de la transition s'approche de $\hbar\omega_{LO}$. De même, le premier anticroisement pour la branche du haut (autour de 12 T) apparaît lorsque l'énergie des photons vaut $\approx 2 \hbar\omega_{LO}$. Finalement, l'anticroisement plus important vers 24 T apparaît lorsque les branches montante et descendante sont écartées de $\hbar\omega_{LO}$.

Cela pose clairement la question du rôle de l'interaction entre les électrons confinés et les phonons optiques.

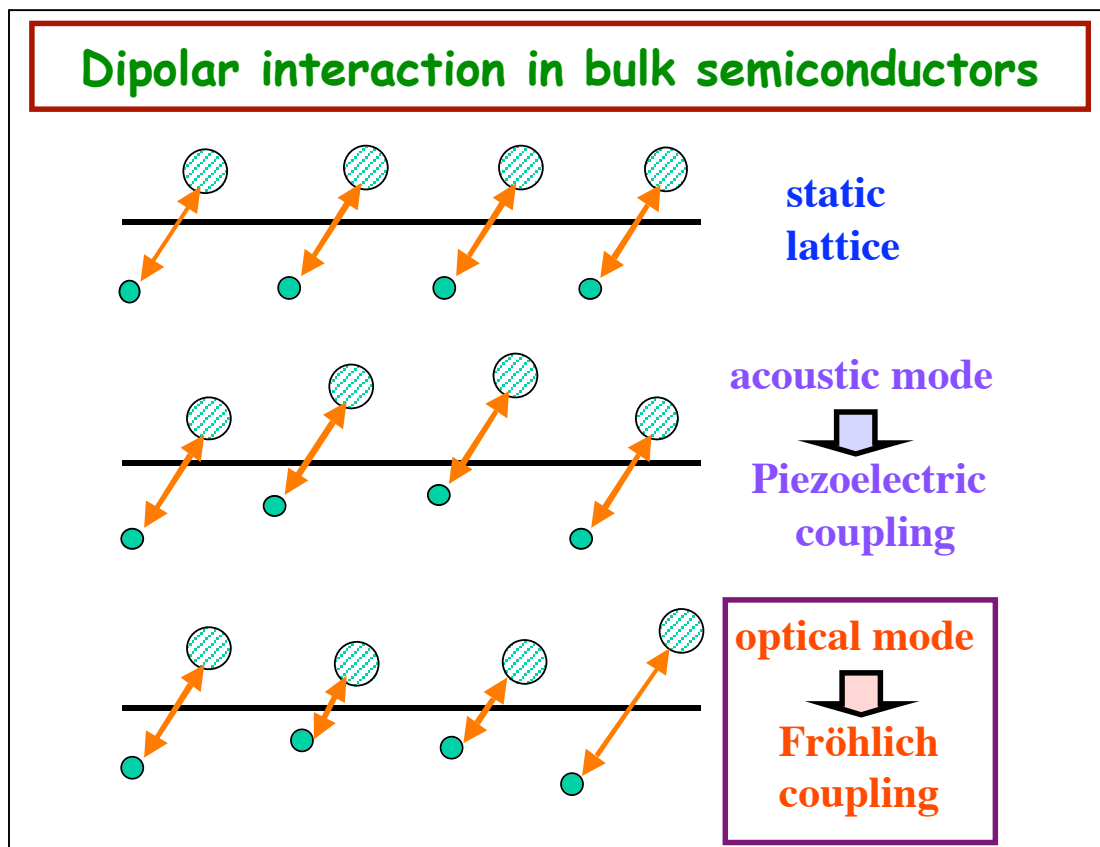
Avant de discuter de l'interaction électron-phonon dans les boîtes quantiques de semiconducteurs, on rappelle sur les figures suivantes quelques résultats sur les modes de vibration massifs (pour le GaAs) :



La blende de zinc comporte deux atomes par maille. Ces atomes oscillent en phase dans les modes acoustiques de basse énergie et en opposition de phase dans les modes optiques (voir figure ci-dessous). Toutefois, le fait saillant pour les modes optiques est la quasi-absence de dispersion. Cette quasi-monochromaticité des modes optiques sera déterminante dans la suite.



Les différents modes de vibration sont à l'origine de différents couplages pour les électrons. Dans le cadre des résultats expérimentaux décrits auparavant, on s'intéressera aux modes optiques. Dans un massif, l'interaction prépondérante électron-phonon LO est l'interaction de Fröhlich. L'origine physique de cette interaction est décrite dans les deux figures suivantes, à l'aide d'un modèle purement classique (par opposition à quantique).

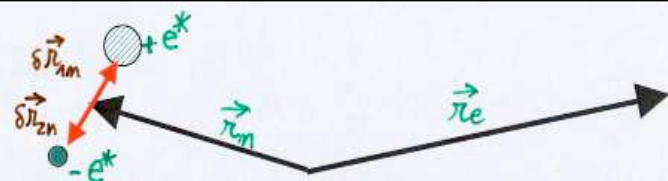


Ce couplage repose sur l'existence de deux atomes différents par maille dans la cellule élémentaire du semiconducteur binaire. La liaison entre les atomes de Ga et de As est légèrement polaire, et engendre un petit transfert de charge électronique. Dans une description simple, on associe aux atomes de Ga (de As) un petit déficit (excès) de charge. Ainsi, l'oscillation de ces deux atomes en opposition de phase est assimilable à celle d'une petite antenne. Comme montré dans la suite, le couplage de Fröhlich résulte de l'interaction coulombienne de l'électron avec l'ensemble (macroscopique) de tous ces dipôles élémentaires oscillant à la fréquence du mode LO.

Le calcul du couplage de l'électron à l'ensemble des dipôles est présenté dans la figure suivante, où les particules chargées sont assimilées à des billes ponctuelles (des atomes de charge $\pm e^*$ et l'électron de charge e) et l'interaction de coulomb développée à l'ordre le plus bas sur la distance électron-cellule (on néglige ainsi des effets à courte portée) :

Electron-LO phonon interaction : a classical model

Dipolar interaction with oppositely charged atoms of the n^{th} unit cell



$$V_n(\vec{r}_e, \vec{r}_m) = \frac{ee^*}{|\vec{r} - \vec{r}_{1n}|} - \frac{ee^*}{|\vec{r} - \vec{r}_{2n}|} \approx -ee^* (\delta \vec{r}_{2n} - \delta \vec{r}_{1n})_0 \frac{\vec{r}_e - \vec{r}_m}{|\vec{r}_e - \vec{r}_m|^3}$$

$\delta \vec{r}_m(t) \equiv \delta \vec{r}_m^{st} + \delta_m(t)$

construction of stationary Bloch States
time-dependent perturbation

$$\delta_m(t) \equiv \frac{1}{2} \delta_0 \vec{e}^{i(\vec{q} \cdot \vec{r}_m - \omega t)} + \text{c.c.}$$

$$V(\vec{r}_e) \equiv \sum_n V_n(\vec{r}_e - \vec{r}_m; t) \longrightarrow \int \frac{d\vec{r}}{\Omega \omega_0} V_n(\vec{r}_e - \vec{r}; t) = -i \frac{2\pi e e^*}{\Omega \omega_0} \frac{\vec{q} \cdot \delta \vec{r}_0}{q^2} e^{i(\vec{q} \cdot \vec{r}_e - \omega t)}$$

Fröhlich-like

- $\frac{1}{q}$ Law
- only LO modes

L'expression finale (entourée) reflète bien les deux résultats plus importants du modèle :

- (i) seuls les modes longitudinaux couplent aux électrons ($\vec{q} \cdot \delta \mathbf{r}_0 \neq 0$)
- (ii) l'interaction est à longue portée (loi en $1/q$)

La forme finale du couplage de Fröhlich est obtenue en quantifiant les modes de vibration du réseau :

Fröhlich interaction in polar materials

Interaction between a charge and
the dipoles oscillating at the LO phonon frequency

$$H_{e-ph} = \sum_q V_q [a_q^+ e^{-iq \cdot r} - a_q e^{+iq \cdot r}]$$

$$V_q = \frac{v_0}{q} \sqrt{\alpha_F}$$

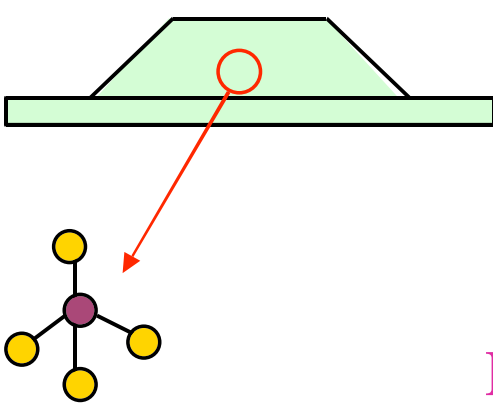
α_F = Fröhlich constant

α_F	=	NaF	AgBr	ZnO	GaAs	InSb
		6.3	1.6	0.85	0.06	0.014

où a_q et a_q^+ sont les opérateurs de destruction et de création de phonons LO massifs de vecteur d'onde \mathbf{q} ; v_0 est une constante dépendante du matériau et α_F la constante de Fröhlich. Cette dernière constante mesure l'importance du couplage entre les électrons et les phonons LO. Elle est très petite dans le GaAs, qui est un matériau légèrement polaire, mais augmente considérablement avec le degré de ionicité de la liaison atomique des atomes du binaire. Ainsi, dans un semiconducteur massif le couplage de Fröhlich est souvent traité en perturbation. En dépit de son caractère « faible », le couplage aux phonons LO est très efficace pour relaxer l'énergie des porteurs chauds dans le massif.

On peut se poser la question de la pertinence de la description précédente pour les boîtes quantiques. Toutefois, comme montré sur la figure suivante, tous les ingrédients à la base du mécanisme de Fröhlich sont également présents dans le cas d'un électron confiné dans une boîte quantique.

Phonons in Ga(In)As QDs



There are **thousands** of unit cells in a typical Ga(In)As quantum dot

The dot **shape** and **interdiffusion** are rather unknown

↓

The phonons are **poorly** known

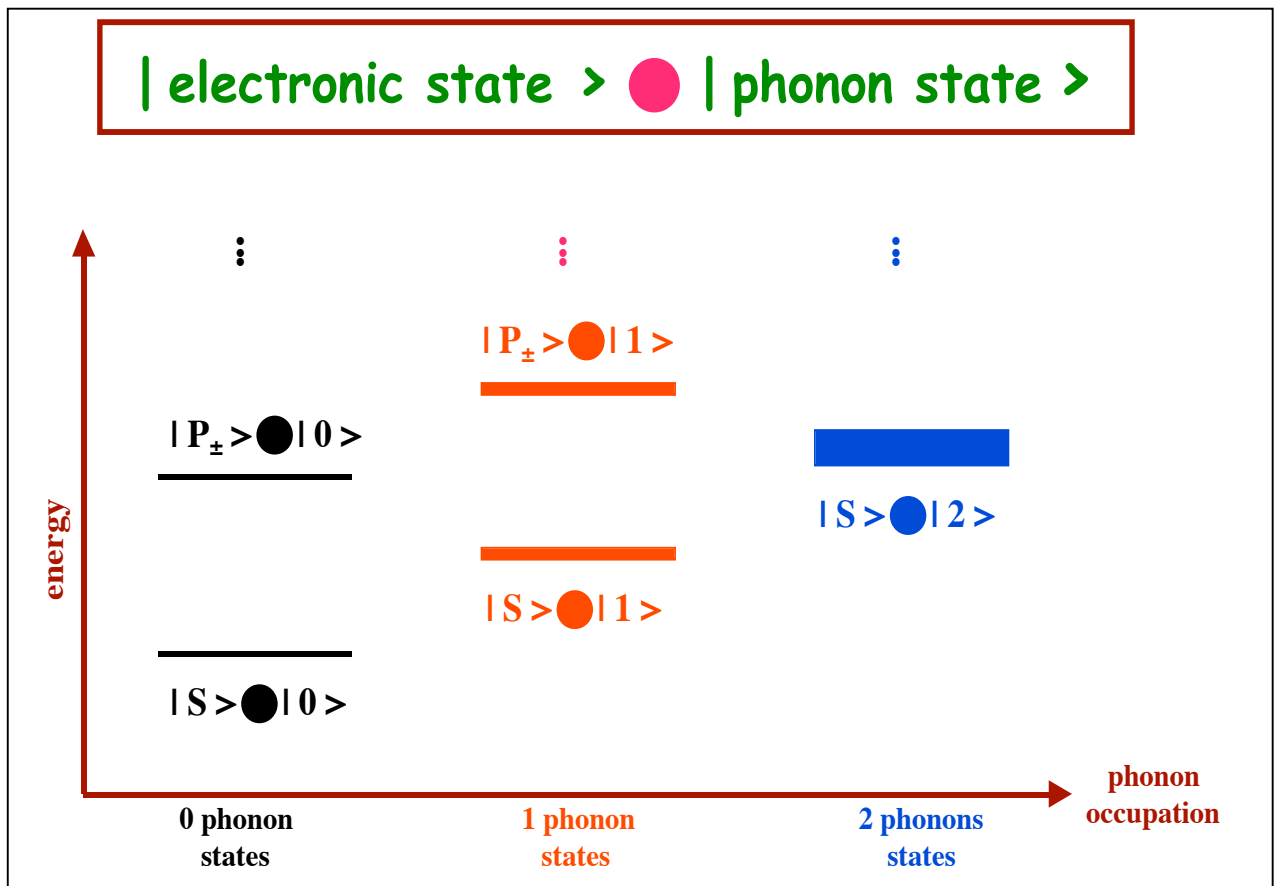
BUT

Each unit cell contains **two different** atoms → **oscillating dipoles**

⇒ the basic ingredients of a **Fröhlich** - like coupling are present

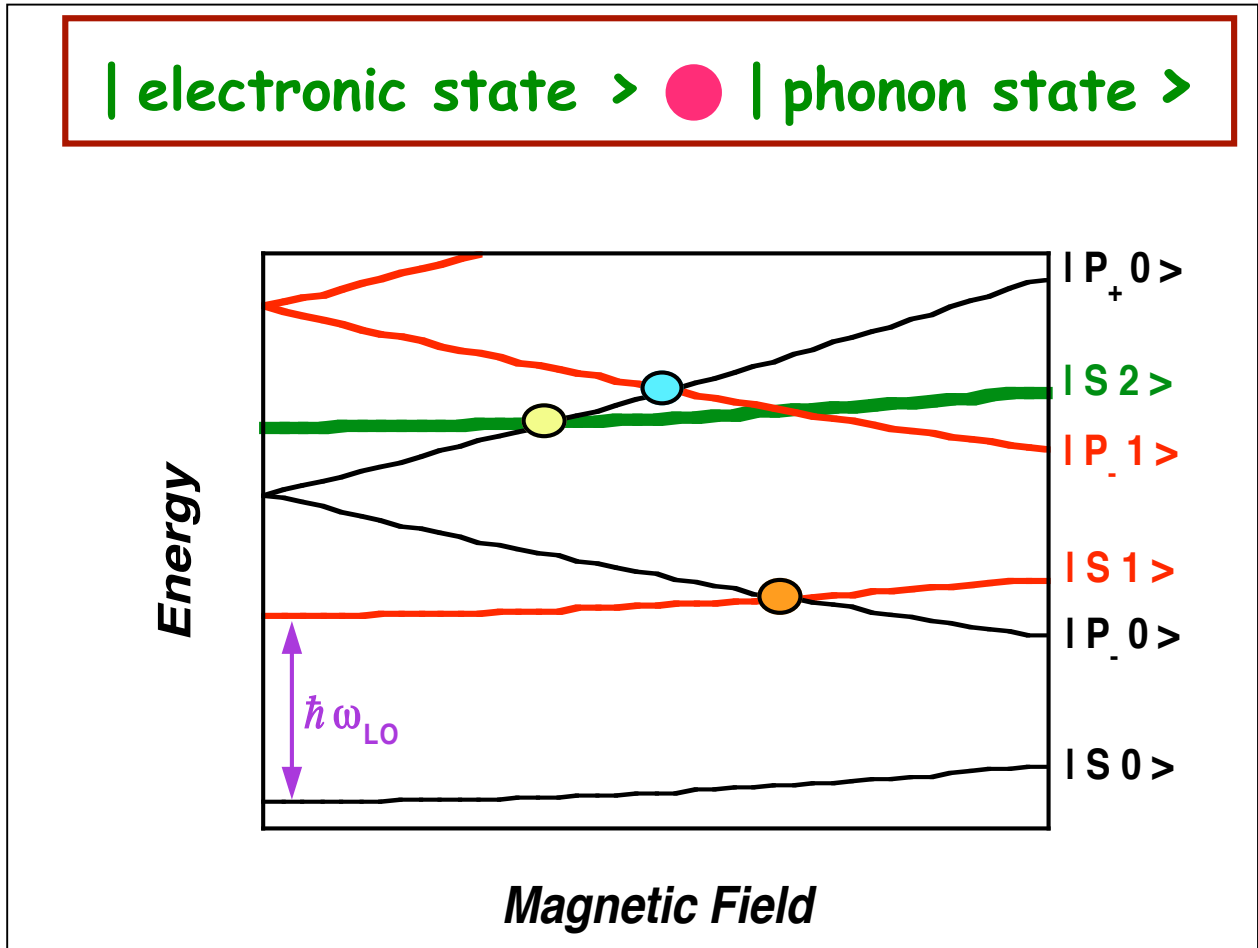
Ainsi, on supposera dans la suite que l'interaction des porteurs confinés avec les vibrations du réseau est décrite par le même couplage massif. On négligera en outre toute modification des modes de vibration dues à la nano-structuration du milieu, et on utilisera dans les calculs présentés par la suite les modes massifs du GaAs (comme suggéré par les expériences), mais avec une constante α_F laissé libre de façon à ajuster les résultats théoriques au mieux avec ceux expérimentaux. Comme on verra par la suite, toutes ces hypothèses trouvent justification à posteriori, en vue du bon accord des calculs avec les résultats expérimentaux.

Le hamiltonian de couplage étant défini, il faut passer à la description quantique de l'interaction électron-phonon pour les porteurs liés. La figure ci-dessous présente la base d'états découplés faisant intervenir les états électroniques d'une boîte « ronde » (c'est-à-dire, ayant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance) et les excitations du réseau (caractérisées par le nombre d'occupation des phonons) :



$|0\rangle$ correspond à l'état non excité du réseau (les atomes effectuent des oscillations de point zéro autour de leurs positions d'équilibre) et $|n\rangle$ représente une excitation arbitraire à n phonons LO (pour $n \geq 1$). Les différentes largeurs des traits associés aux états à zéro, à un et à deux phonons résultent de la (faible mais non nulle) dispersion des modes optiques massifs. Compte tenu des paramètres expérimentaux (énergie maximale des photons et température cryogénique), on peut restreindre la base aux seuls états « utiles » présentés sur la figure.

L'évolution en champ d'un état découplé est égale à celle de l'état électronique correspondant, comme schématisé sur la figure suivante pour l'ensemble des états de base de la figure précédente :

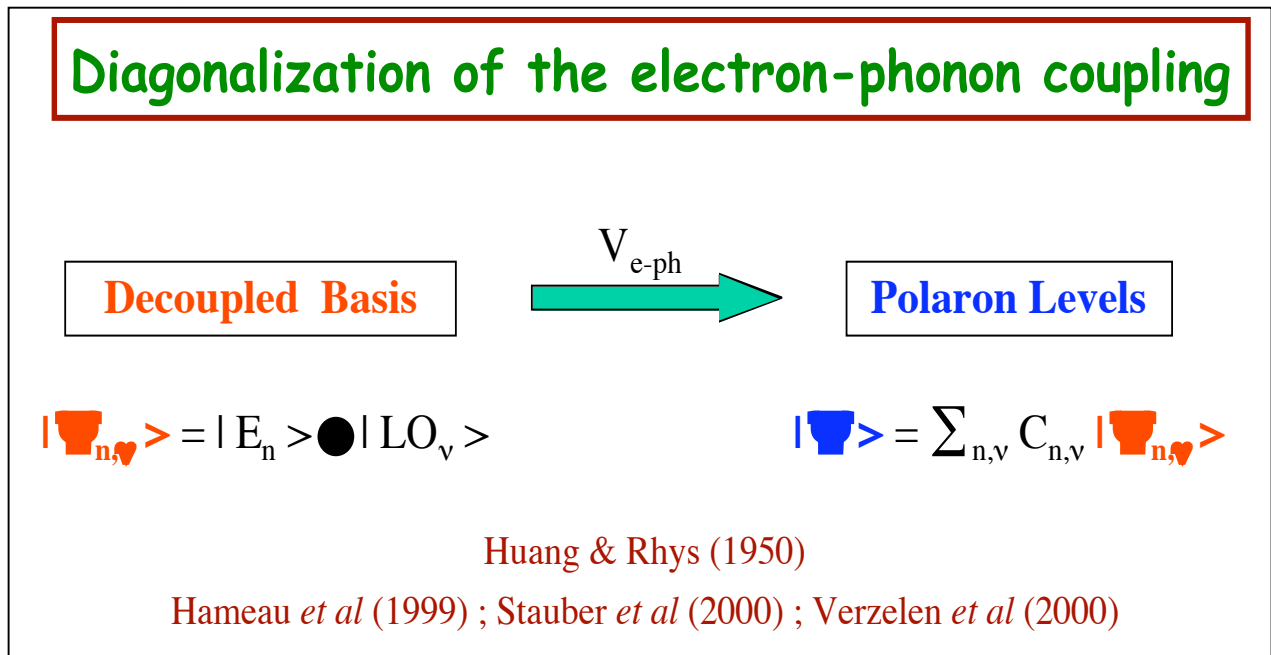


On observe sur ce schéma l'apparition de croisements entre états de base à nombres d'occupations de phonons différents ($|\Delta n| = 1$ ou 2) en présence du champ (cercles). Cela résulte de deux faits principaux :

- (i) les états S, P_+ et P_- évoluent de façon très différente avec B ;
- (ii) l'écart énergétique entre les couches S et P est comparable à $\hbar\omega_{LO}$.

La conjonction de ces deux effets (et donc l'existence des résonances induites par le champ) est très caractéristique des boîtes quantiques auto-organisées de InAs/GaAs.

Pour résoudre le problème du couplage entre électrons et phonons LO, on doit diagonaliser la perturbation de Fröhlich dans la base découplée décrite plus haut. Cela mène à des états qui sont des mélanges complexes d'orbitales électroniques différentes et d'états excités différents du réseau, comme schématisé sur la figure suivante (où $|v\rangle$ étiquette les différents modes phonons LO massifs) :

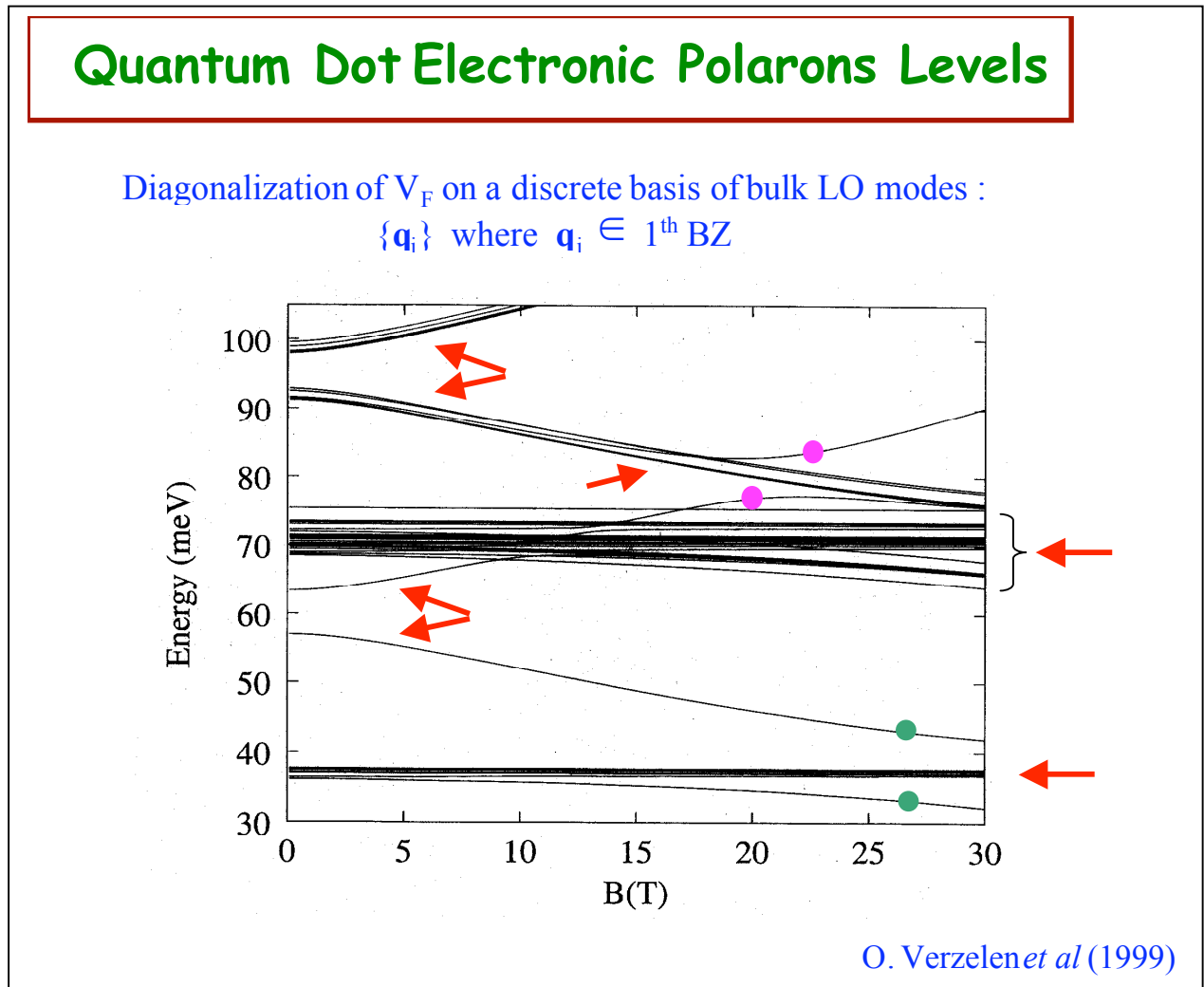


On appelle états de polarons les états propres du système couplé (électron confiné dans la boîte) *plus* (excitations LO du réseau). Ces états sont à priori des vrais intrications d'orbitales électroniques et d'excitations du réseau. En fait, un quelconque état de polaron est engendré par l'ensemble des états de base, et se présente ainsi sous la forme générique :

$$\begin{aligned}
 | \heartsuit \rangle = & [C_{S\bullet} | S \rangle + C_{P+\bullet} | P_+ \rangle + C_{P-\bullet} | P_- \rangle] \bullet | \emptyset \rangle \\
 & + \sum_{\heartsuit} [C_{S\heartsuit} | S \rangle + C_{P+\heartsuit} | P_+ \rangle + C_{P-\heartsuit} | P_- \rangle] \bullet | 1_{\heartsuit} \rangle \\
 & + \sum_{\heartsuit\heartsuit} [C_{S\heartsuit\heartsuit} | S \rangle + C_{P+\heartsuit\heartsuit} | P_+ \rangle + C_{P-\heartsuit\heartsuit} | P_- \rangle] \bullet | 2_{\heartsuit\heartsuit} \rangle \\
 & + \dots
 \end{aligned}$$

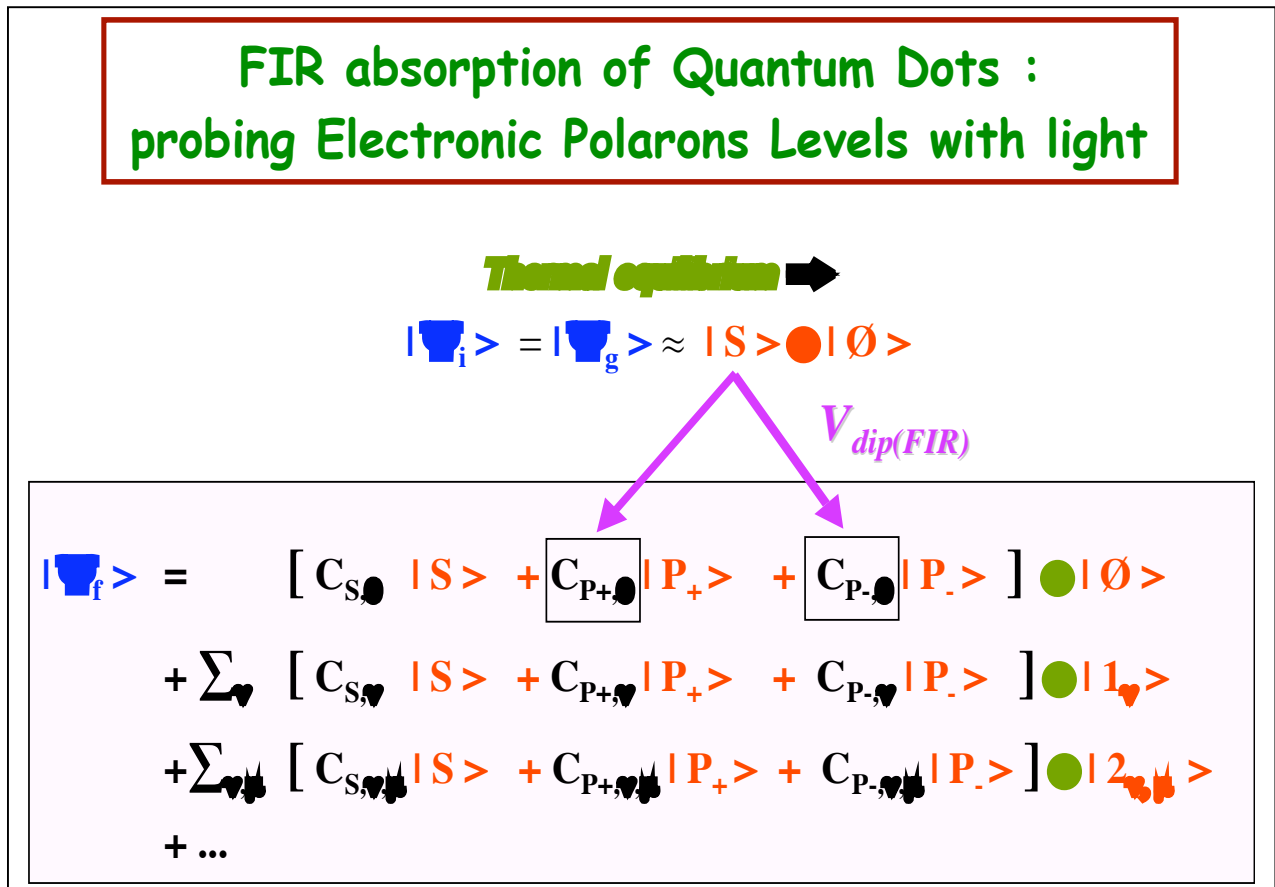
On reviendra plus loin sur les vecteurs propres des états polarons.

La figure suivante montre les valeurs propres (comptées à partir du fondamental non montré) obtenues après diagonalisation du couplage de Fröhlich dans une base comprenant un nombre fini d'états LO propagatifs (après maillage de la dispersion des phonons LO dans l'espace réciproque du GaAs) :



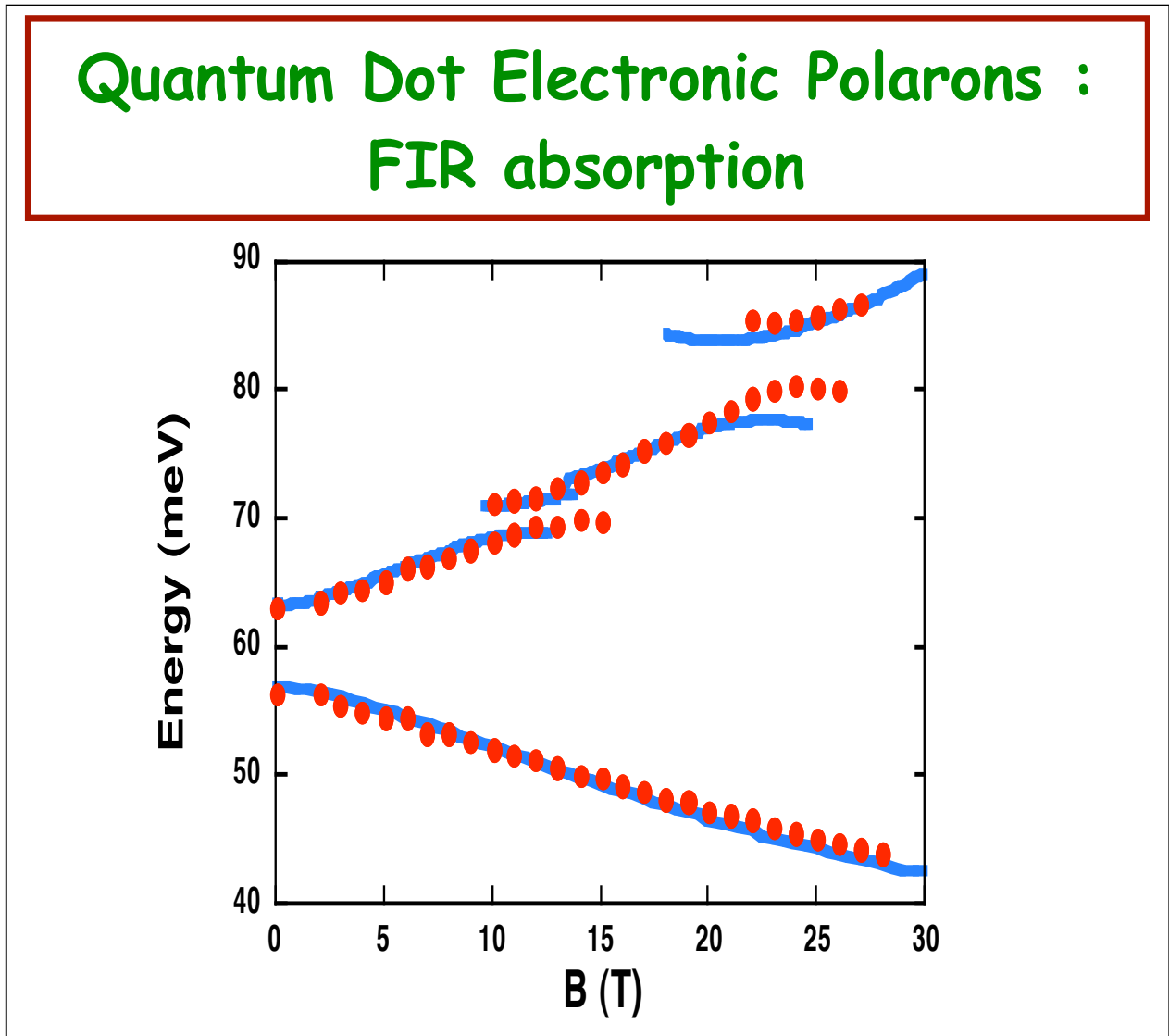
On repère facilement les principaux traits prédits à l'aide des états découplés. Il faut noter que pour certains états polarons (repérés par des cercles) les croisements induits par le champ sont clairement remplacés par des d'anticroisements, mais que la grande majorité des états à 1 ou à 2 phonons (repérés par des flèches) suivent les prédictions du modèle d'états découplés. On vérifie numériquement que ces derniers sont très largement issus d'une unique orbitale électronique avec un seul nombre d'occupation, et ne représentent donc pas une vraie intrication entre états de l'électron et excitation du réseau, mais ressemblent plutôt à des états découplés. On reviendra plus loin sur ce point.

Dans le dessein d'interpréter les spectres de magnéto-absorption, on a calculé la probabilité d'absorption optique dans l'approximation du dipôle électrique (les dimensions de la boîte sont largement inférieures à la longueur d'onde des photons infra-rouge). Les états initial et final sont :



Ce schéma présente également les états de base couplés par le couplage dipolaire à la lumière (qui ne peut pas coupler des états à nombre de phonons différents). En absence de mélange polaron, l'absorption optique se fait depuis l'état initial $|S\rangle \otimes |0\rangle$ (le seul peuplé pour $T \approx 0K$) et vers les états finals $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$. En présence de couplage polaron, les états finals accessibles optiquement sont ceux pour lesquels les poids des composantes $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$ sont non-négligeables, puisque l'état fondamental est bien isolé énergétiquement des autres états du système et reste pour tout champ essentiellement donné par l'état découplé fondamental $|S\rangle \otimes |0\rangle$. Ainsi, les expériences permettent de sonder optiquement un nombre très restreint de composantes des fonctions d'onde des états polarons excités.

On a retenu dans les calculs seulement les transitions avec intensité supérieure à 10% (dans une échelle entre 0 et 1). Les résultats des calculs (courbes pleines) sont comparés aux résultats expérimentaux (courbes en pointillés) dans la figure suivante:



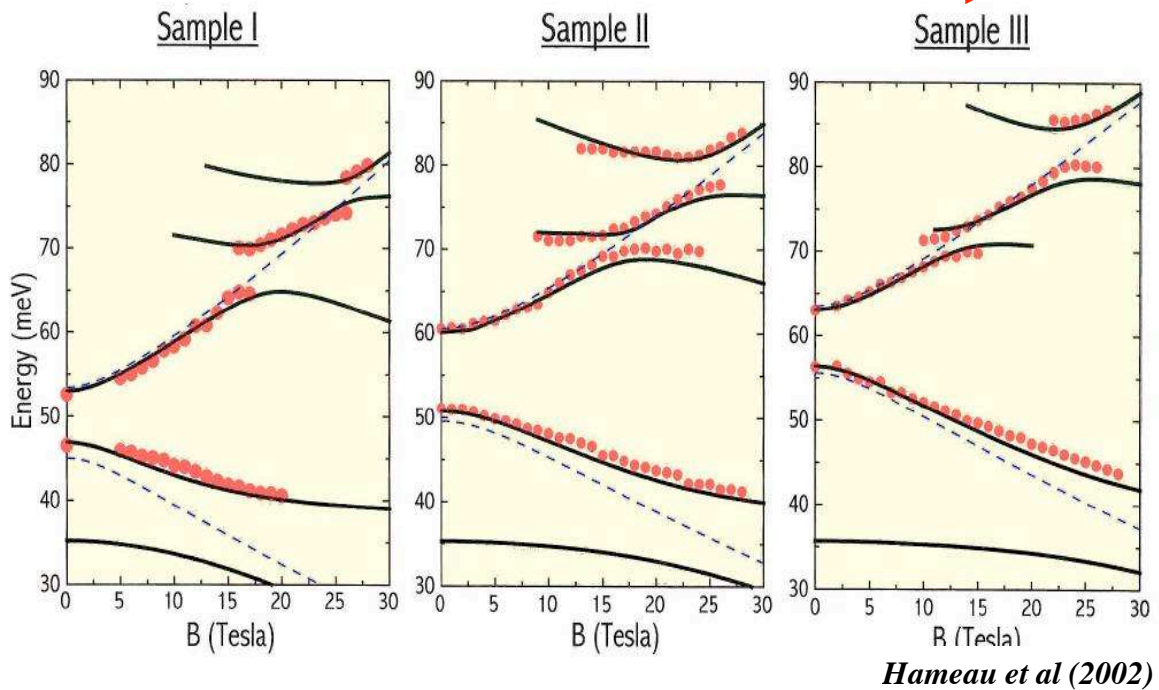
On observe sur cette figure l'évolution avec le champ d'un nombre très restreint de raies d'absorption (seules les énergies des transitions sont présentées). En effet, comme souligné plus haut, une expérience optique est très selective des états polarons, puisque sensible aux poids de seules deux composantes $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$.

Lorsque l'on compare plus en détail cette figure pour l'absorption avec celle pour les valeurs propres des états polarons, on remarque que l'absorption au voisinage d'un anticroisement expérimental est en effet gouvernée par les états qui s'anti-croisent en présence du champ (c'est notamment visible pour l'anticroisement de la branche du bas et pour celui de la branche du haut vers 24T). Ceci est en accord avec ce qui a été dit plus haut des états qui suivent les prédictions du modèle d'états découplé, à savoir, qu'ils sont très largement issus d'une unique orbitale électronique avec une unique occupation des phonons. Lorsque l'orbitale est de type S et/ou lorsque l'occupation ≥ 1 , l'état ne contribue pas au processus optique. Les états qui s'anticroisent décrivent au contraire des vraies intrications entre les électrons et les phonons.

Il faut rappeler que l'interaction de Fröhlich couple seulement des états avec nombre d'occupations différant d'une unité (à cause de la forme linéaire de cette interaction au regard des opérateurs de création et annihilation). C'est le cas de la branche du bas, pour laquelle $|P_{-}\rangle \otimes |0\rangle$ anticroise $|S\rangle \otimes |1\rangle$, et aussi pour l'anticroisement supérieur (autour de 24T) de la branche du haut, faisant intervenir essentiellement les états $|P_{+}\rangle \otimes |0\rangle$ et $|P_{-}\rangle \otimes |1\rangle$. Le petit anticroisement de la branche du haut vers 12T est en réalité un anticroisement « frustré », puisqu'il résulte des interactions indirectes entre les états $|P_{+}\rangle \otimes |0\rangle$ et $|S\rangle \otimes |2\rangle$.

Magneto-Optical evidences of Polaron states in Quantum Dots

Increasing lateral confinement →



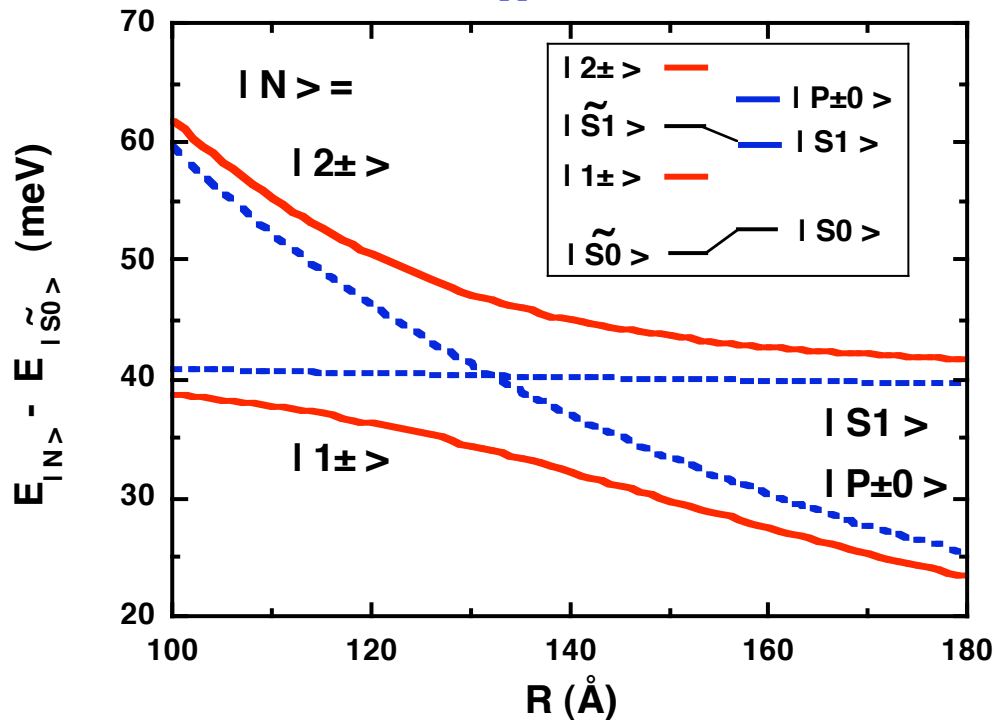
Le couplage fort entre électrons confinés et modes LO a été observé dans différents échantillons avec population moyenne d'une charge per boîte. Les échantillons de la figure présentent des transitions FIR légèrement décalées à zéro champ, traduisant leurs géométries (tailles moyennes) légèrement différentes. Les dispersions en champ sont néanmoins tout à fait semblables. Il faut également souligner quelques résultats plus récents (sur lesquels nous ne nous attarderons pas ici) :

- (i) évidences expérimentales de couplage polaron pour les trous et paires électron/trou des boîtes quantiques respectivement dopées p et intrinsèques ;
- (ii) mesure des anticroisements induits par le champ magnétique dans des échantillons à (en moyenne) deux électrons per boîte.

Cet ensemble de résultats traduisent l'universalité du couplage fort entre les particules liées et les phonons LO dans ces structures.

Quantum Dot Electronic Polarons

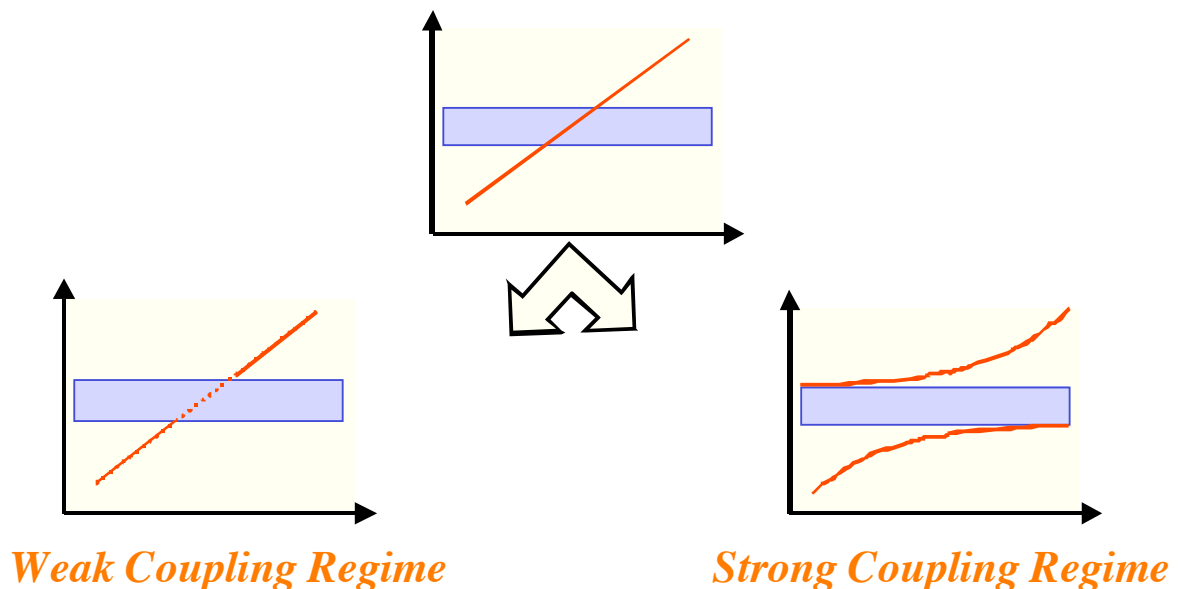
Role of the QD parameters (axial approximation)



Comme souligné auparavant, un grand atout des expériences de magnéto-absorption est de disposer d'un paramètre de contrôle permettant d'induire une résonance énergétique entre des états à zéro et à un phonon. Des expériences à zéro champ sur un ensemble inhomogène de boîtes ne permettent pas d'identifier sans ambiguïté la présence du couplage polaron. La figure montre comment le couplage polaron varie avec la géométrie des boîtes. On observe un anticroisement prononcé pour les états polarons lorsque les niveaux $|S\rangle \otimes |1\rangle$ et $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$ se croisent. Il faut noter la spécificité des boîtes quantiques auto-organisées de InAs/GaAs, qui ont couramment des dimensions presque optimales pour un couplage polaron maximal (lorsque les couches S et P à zéro phonon sont écartées d'un phonon LO).

Physical interpretation of QD Polarons : Strong Coupling of Electrons and LO phonons

*Interaction between
one discrete level and a narrow continuum of states*



Les calculs numériques donnent un très petit nombre d'états mixtes optiquement couplés à l'état fondamental, en accord avec les spectres mesurés. Un modèle simple de couplage d'un niveau discret à un continuum de largeur finie permet de comprendre ce résultat. Le paramètre clé est le rapport $r = \langle |V| \rangle / \Delta$ entre la force $\langle |V| \rangle$ du couplage (moyenne sur le continuum de la valeur absolue de l'élément de matrice V du couplage), et la largeur Δ du continuum. Lorsque $r \ll 1$ on se trouve dans un régime de couplage faible : le niveau discret se dissocie irréversiblement lorsqu'il est placé à l'intérieur du continuum. Dans le régime opposé, $r \gg 1$ et le couplage au niveau discret est suffisamment fort pour réorganiser le continuum. Cette réorganisation se traduit par la formation d'un niveau « moyen », combinaison linéaire des états du continuum, avec lequel le niveau discret couple de façon privilégiée. Ce résultat est plus transparent dans la limite $r \rightarrow \infty$, considéré dans les figures qui suivent.

One-phonon QD Polaron : an analytical model

$$H = H_e + \sum_n a_n a_n^\dagger \hbar\omega_n + H_{e-ph}$$

$$|\Psi\rangle \approx a |1P, \emptyset\rangle + \sum_n b(\mathbf{q}_n) |1S, 1_n\rangle \quad (\text{low temp})$$

1 + N basis states

$$\begin{pmatrix} \epsilon_P - \bullet & \lambda_1 & \lambda_2 & \dots & \lambda_N \\ \lambda_1^* & \epsilon_S + \hbar\omega_1 - \bullet & 0 & \dots & 0 \\ \lambda_2^* & 0 & \epsilon_S + \hbar\omega_2 - \bullet & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \lambda_N^* & 0 & 0 & \dots & \epsilon_S + \hbar\omega_N - \bullet \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b(\mathbf{q}_1) \\ b(\mathbf{q}_2) \\ \dots \\ b(\mathbf{q}_N) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ \dots \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$\lambda_n = \sqrt{\mu_F} \frac{v_0}{q_n} \langle P | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | S \rangle$$



$$\begin{aligned} (\epsilon_P - \bullet) a + \sum_n \lambda_n b(\mathbf{q}_n) &= 0 \\ (\epsilon_S + \hbar\omega_n - \bullet) b(\mathbf{q}_n) + \lambda_n^* a &= 0 \end{aligned}$$

1 + N solutions



$$\epsilon_P - \bullet = \sum_n \frac{|\lambda_n|^2}{(\epsilon_S + \hbar\omega_n - \bullet)}$$

1 + N solutions



$$(\epsilon_P - \bullet) (\epsilon_S + \hbar\omega_{LO} - \bullet) = \sum_n |\lambda_n|^2$$

2 solutions **IF** the LO dispersion is neglected !

Les deux solutions non-triviales obtenues pour un « continuum » monochromatique ($\Delta = 0$) reflètent la réorganisation de ce « continuum » en présence du niveau discret.

One-phonon QD Polaron : an analytical model

Extracting ONE particular phonon mode from the degenerate one-phonon continuum

0-ph state coupled to all 1-ph states

two equivalent basis

$$|1P, \emptyset\rangle \xrightarrow{V_F} \{ |1S; 1_n\rangle \}$$

with $\mathbf{q} = \mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \dots, \mathbf{q}_N$ and $\langle 1_n | 1_n \rangle = \delta_{n,n}$,

0-ph state coupled to one 1-ph state \Rightarrow equivalent « two level » problem

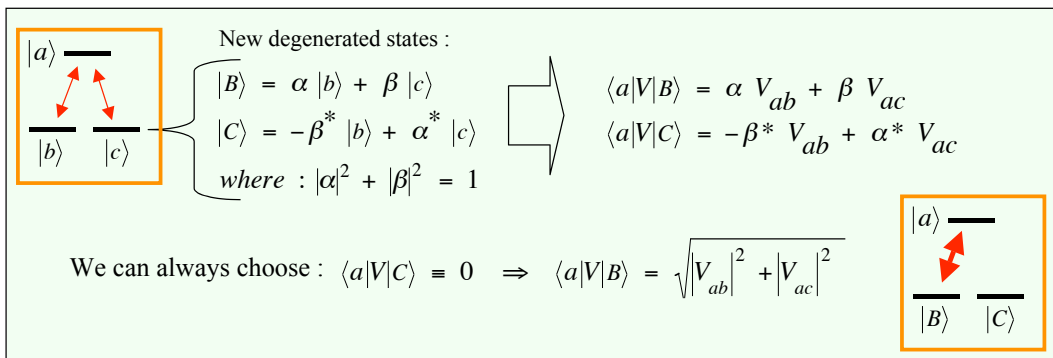
$$|1P, \emptyset\rangle \xrightarrow{V_F} |1S; 1_{LO_1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{\sum_n |\lambda_n|^2}} \sum_n \lambda_n^* |1S; 1_n\rangle$$

$$\{ |1S; 1_{LO_n}\rangle \}$$

with $n = 2, 3, \dots, N$ and $\langle 1_{LO_n} | 1_{LO_n} \rangle = \delta_{n,n}$,

L'origine physique de ce résultat est la monochromaticité du « continuum ». Ainsi, toute combinaison linéaire des états dégénérés du « continuum » est, bien évidemment, une solution stationnaire à la même énergie. On peut engendrer de façon unique UNE combinaison linéaire appropriée, couplée au niveau discret et tel que toute autre combinaison linéaire orthogonale à celle-ci ne couple PAS au même niveau discret. Cela est illustré dans un modèle simple à trois niveaux sur la figure suivante :

Extracting ONE particular mode from a degenerate continuum :
a simple three - level example



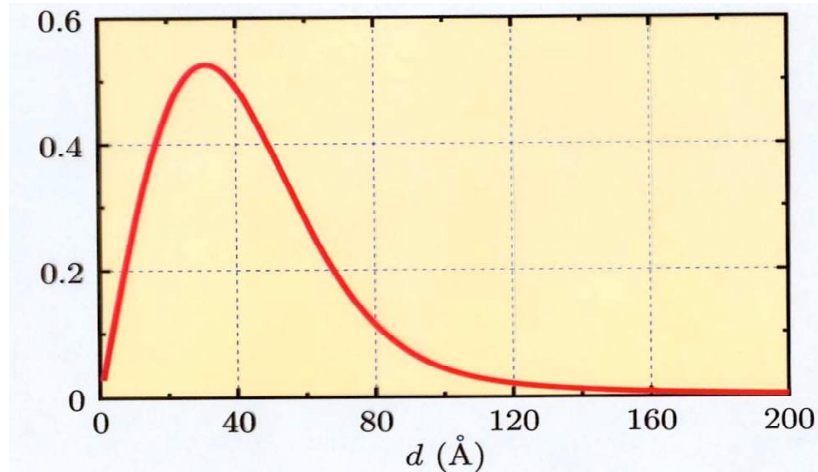
Ainsi, pour $r = \infty$, le problème à $N + 1$ niveaux couplés se simplifie en un problème à deux niveaux.

Pour $r \gg 1$, la non-monochromaticité peut être négligée dans un premier temps, face à la force du couplage. Cela explique l'existence d'un niveau particulier (« moyen ») couplé au niveau discret, comme suggéré par les calculs numériques complets (et les expériences), qui tiennent en compte la faible dispersion des phonons LO.

Les calculs des états polarons (et de la magnétoabsorption), réalisés à l'aide de ce modèle simple à deux niveaux, sont en très bon accord avec les calculs numériques (et donc aussi avec les mesures).

One-phonon QD Polaron : an analytical model

Displacement of the atoms involved in the polaron resulting from the resonant coupling of $|P; 0\rangle$ and $|S; 1\rangle$



*LOCALIZED PHONON MODE
induced by the Frohlich coupling of the lattice atoms with
LOCALIZED ELECTRONIC LEVELS*

Le modèle analytique de couplage à un « continuum » plat simplifié de façon considérable l'évaluation numérique de différentes grandeurs physiques. Outre le spectre de magnétoabsorption, on a calculé l'amplitude moyenne d'oscillation des atomes du réseau impliqués dans la formation de l'état polaron, dans le cas de l'interaction entre les niveaux $|S\rangle \otimes |1\rangle$ et $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$. La figure montre la variation de cette amplitude (à une constante près) avec la distance de l'atome au centre de la boîte, suivant une ligne à $z = \text{constante}$ (à la base de la boîte, au-dessus de la couche de mouillage), pour une boîte de rayon $R = 100 \text{ \AA}$. On observe que seuls les atomes « à l'intérieur » de la boîte participent à ce mode de vibration LO particulier $|1_{SP}\rangle$ pour lequel $|S\rangle \otimes |1\rangle$ et $|P_{\pm}\rangle \otimes |0\rangle$ sont couplés. Pour un mode propagatif, ce même calcul donne une valeur constante. Cela implique la formation d'un mode localisé de vibration (paquet de phonons), à cause de l'interaction des atomes du réseau avec l'électron confiné.

Electron - LO phonon coupling in GaAs/InAs Quantum Dots

or

*Are Quantum Dots
« artificial atoms » ?*

**Strong Coupling
to lattice vibrations**

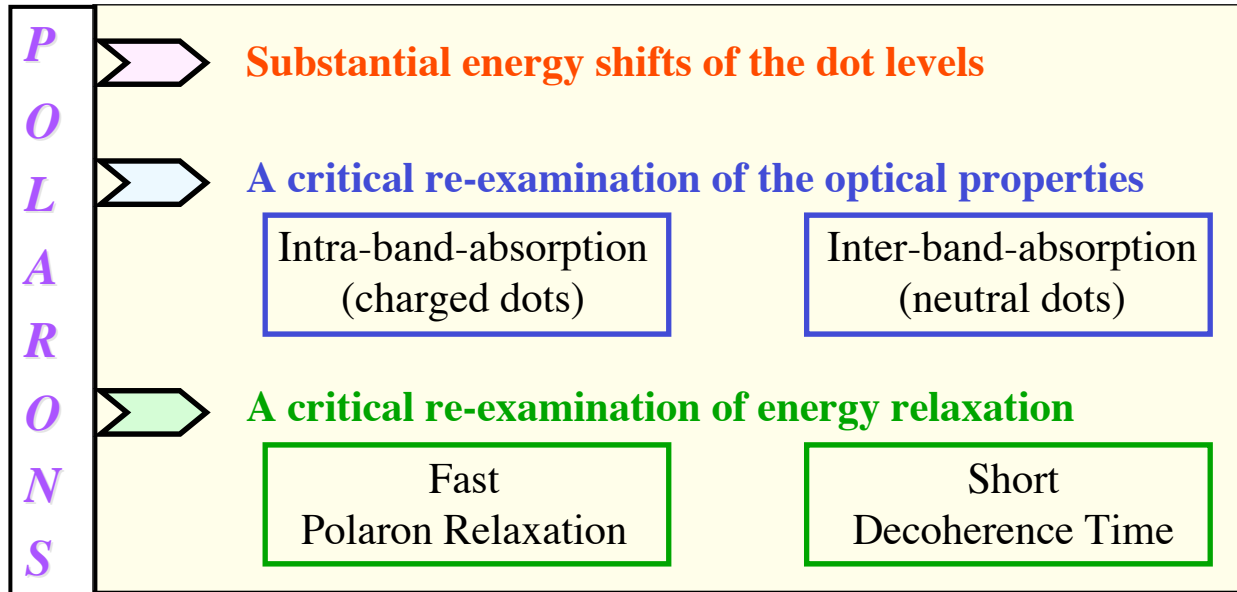


« macroatoms in a self-induced cavity » !

On présente souvent le système formé d'un électron piégé dans une boîte quantique comme un « atome artificiel ». On vient de voir que le couplage fort aux vibrations LO du réseau modifie de façon considérable les états énergétiques de cet « atome ». Cet effet a été prédit la première fois par Inoshita & Sakaki (1997) pour les boîtes quantiques auto-organisées, à l'aide d'une analyse avec des fonctions de Green. Il est analogue à l'effet non-perturbatif caractérisant le couplage fort d'un atome avec des modes photons confinés dans une cavité métallique, ou d'un exciton avec des modes photons confinés dans une micro-cavité de semiconducteurs. Seulement qu'ici la « cavité » n'a pas une réalité physique précise et le mode phonon confiné est engendré par le couplage même de l'« atome » avec le milieu dans lequel il se trouve (et qui, au fait, le définit).

Conclusions

Confined electrons and LO phonons are in the
strong coupling regime



Les états énergétiques excités d'une boîte quantique chargée sont fortement affectés par le couplage de l'électron confiné avec les vibrations longitudinales du réseau. Les conséquences de l'existence d'un couplage fort sont nombreuses. Les expériences de magnétoabsorption démontrent clairement les importants décalages énergétiques introduits par le couplage fort. Outre ces corrections réelles des énergies, le couplage polaron apporte une tout autre dimension au problème de la relaxation dans ces structures. En effet, des résultats expérimentaux plus récents d'excitation FIR avec résolution en temps (configuration pompe-sonde) démontrent clairement le rôle du couplage polaron sur le mécanisme à l'origine de la thermalisation d'une population photoexcitée. Ce dernier aspect est discuté dans la suite de ce chapitre.




References :

- Hameau et al (1999) : S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître and J-M. Gérard, Phys. Rev. Lett. 83, 4152 (1999)
- Hameau et al (2002) : S. Hameau, J. Isaïa, Y. Guldner, E. Deleporte, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman and J-M. Gérard, Phys. Rev. B65, 085316 (2002)
- Huang & Rhys (1950) : K. Huang and A. Rhys, Proc. Royt. Soc. London, A204, 406 (1950)
- Inoshita & Sakaki (1997) : Phys. Rev. B56, R4355 (1997)
- Stauber et al (2000) ; T. Stauber, R. Zimmermann and H. Castella, Phys. Rev. B62, 7336 (2000)
- Verzelen et al (2000) :O. Verzelen, R. Ferreira and G. Bastard, Phys. Rev. Lett 88, 146803 (2002)
- Verzelen (2002) :Thèse de Doctorat de l'Université Paris VI (2002)

CHAPITRE 2B

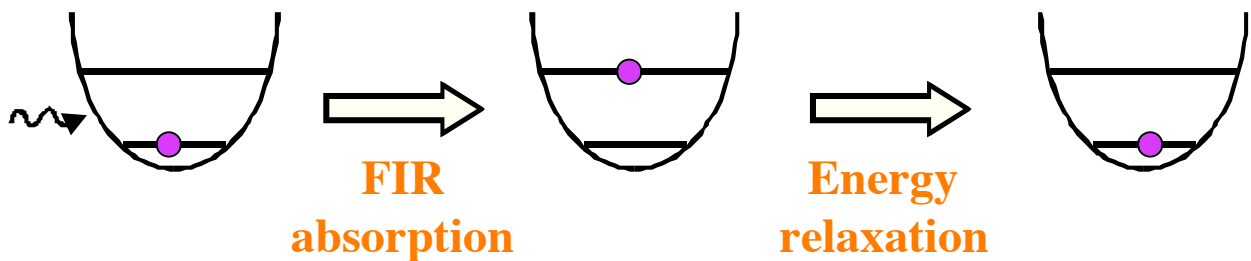
*Dynamique de relaxation
énergétique dans les
boîtes quantiques auto-assemblées*

Polaronic effects and energy relaxation in InAs/GaAs Quantum Dots

-  **The energy relaxation problem in QDs**
-  **A key effect : the intrinsic lifetime of optical phonons**
-  **Energy relaxation in the « semi-classical »
and « polaron » frameworks**

Cette deuxième partie est dédiée au problème de la relaxation d'énergie dans les boîtes quantiques auto-organisées. On présente (et compare) les deux modèles proposés dans la littérature pour interpréter les mesures du temps de vie de la population d'un état excité de boîte, dans le domaine FIR.

Absorption experiments in doped QDs



FIR absorption experiments

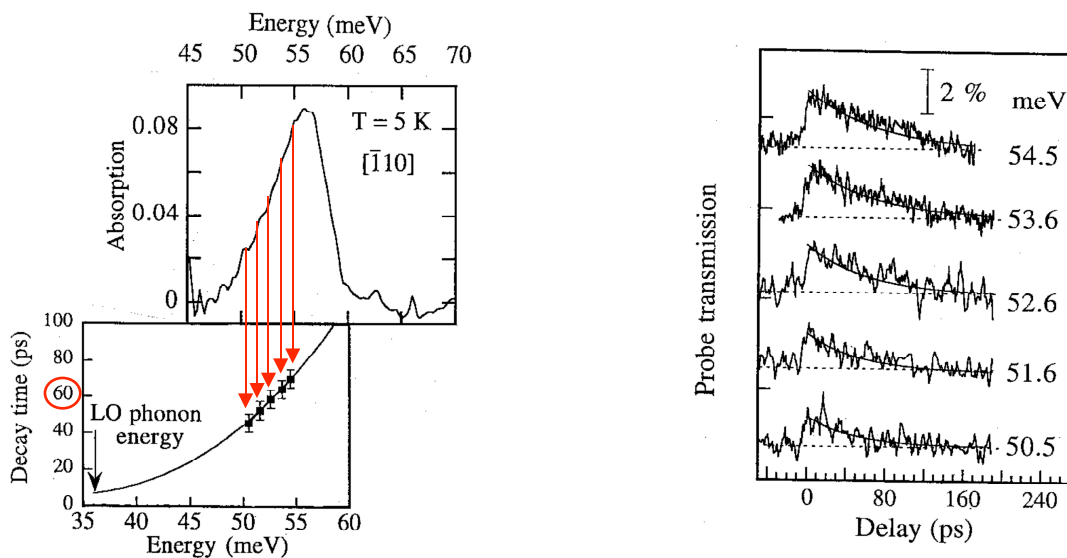


Necessity of an energy relaxation mechanism

Revenons un instant aux expériences de magnétoabsorption sur un ensemble de boîtes. Sous excitation continue, la mesure d'un spectre d'absorption suppose de façon implicite une relaxation, qui permet la réalisation d'un large nombre de processus d'excitation dans le temps de mesure et donc justifie du caractère statistique du signal. Sur un long intervalle de temps, chaque boîte excitée de manière résonante et continue est le siège d'un grand nombre de processus d'absorption et relaxation.

Pump-probe measurements of the Energy Relaxation Dynamics

Measurements on an ensemble of QDs



S. Sauvage et al (2002)

Des expériences avec résolution temporelle (du type pompe-sonde) dans le FIR ont permis de remonter au temps de relaxation de la population des niveaux excités des boîtes d'un ensemble inhomogène. Comme on peut voir sur la figure, ces temps sont de l'ordre de quelques dizaines de ps et augmentent légèrement (mais significativement) avec l'énergie relaxée (plus précisément, avec l'énergie du photon FIR). On reviendra plus loin sur la dépendance avec l'énergie.

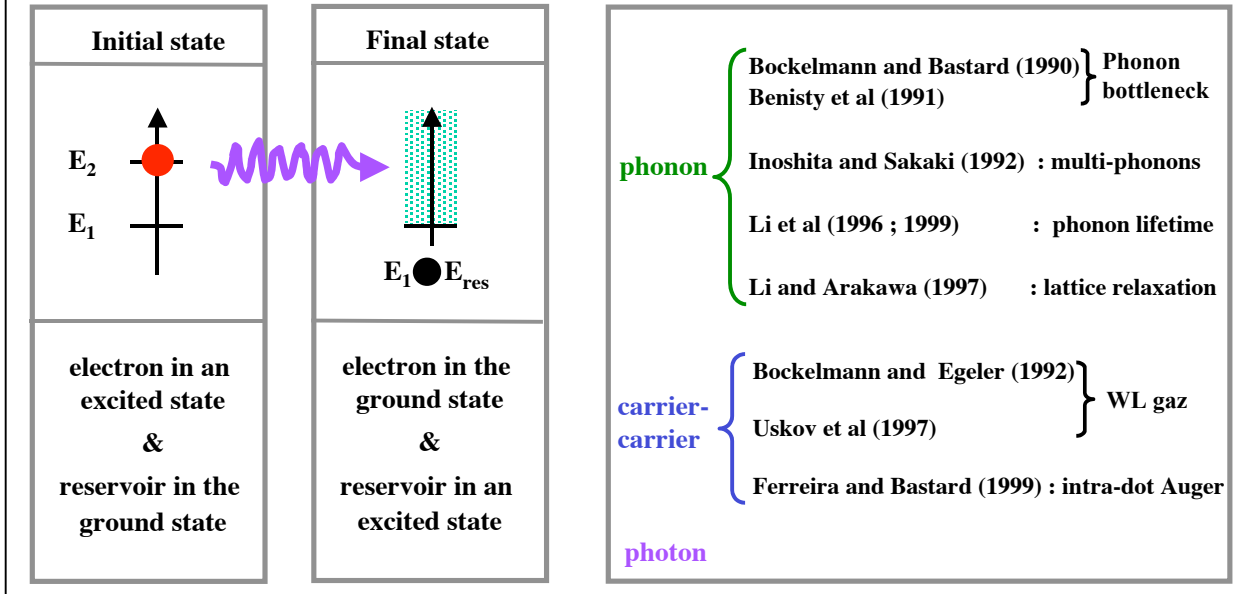
Le problème se pose donc du mécanisme à l'origine de cette relaxation énergétique.

The energy relaxation problem in Quantum Dots

Early image of energy relaxation



irreversible transition towards the ground electronic level

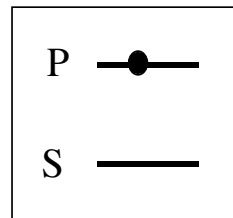


A l'époque des premières mesures FIR en temps, le problème de la relaxation énergétique dans les boîtes quantiques était déjà un sujet controversé en optique inter-bande. Différents couplages avaient alors été envisagés pour expliquer la relaxation d'un électron depuis un état excité vers l'état lié fondamental (voir figure ci-dessus). Dans le contexte des expériences FIR, il faut tout d'abord exclure les processus radiatifs (induits ou spontanés), compte tenu de la gamme spectrale en jeu (et cela malgré le grand dipôle de la transition S-P). Ensuite, des processus coulombiens faisant intervenir des porteurs libres (dans la couche de mouillage ou barrière) ou deux porteurs piégés, sont peu probables, puisque chaque boîte contient en moyenne un seul électron (et les excitations sont peu intenses et d'énergie insuffisante pour ioniser les boîtes). Finalement, comme on verra dans ce qui suit, le processus de relaxation habituel pour un porteur « chaud » dans un semiconducteur massif, c'est-à-dire, l'émission de phonons, est également à exclure.

The energy relaxation problem in Quantum Dots

Early studies : **relaxation in the « weak coupling » regime :**

The electron **CANNOT** irreversibly emit LO (or LA) phonons



$$\Delta_{LA} < E_P - E_S \neq \hbar\omega_{LO}$$



« phonon bottleneck » !

Bockelmann & Bastard (1990)

Les premiers calculs démontrant l'existence d'un ralentissement spectaculaire de l'émission de phonons dans les boîtes quantiques remontent au début des années 90. D'après ces calculs, l'émission de phonons acoustiques est fortement inhibée, voire interdite, dès lors que l'énergie à relaxer dépasse une dizaine de meV, tandis que l'émission de phonons optiques devient inefficace à cause de leur quasi-monochromaticité. L'existence d'un tel « goulot » pour la relaxation est donc une conséquence directe de la discrétisation du spectre électronique des électrons confinés.

D'autres mécanismes liés aux phonons ont ensuite été avancés pour expliquer l'absence de preuve expérimentale nette d'un goulot de relaxation en optique inter-bande.

(i) L'émission de deux phonons, un optique et un acoustique, permet de lever la monochromaticité quasi-strictes des modes optiques. Il est néanmoins effectif à l'intérieur d'une plage d'énergie étroite autour de celle du phonon optique.

(ii) Le mécanisme de relaxation par émission multi-phonon associée à un niveau de piège (relaxation du réseau) fait intervenir un double transfert de l'électron entre la boîte et un défaut autour de la boîte (où la relaxation a effectivement lieu, avant que le porteur ne soit re-piégé par la boîte dans son état fondamental). C'est donc un mécanisme non intrinsèque, et fortement dépendant de l'environnement proche de la boîte.

(iii) Le mécanisme que nous retiendrons par la suite est celui lié au temps de vie fini des phonons optiques.

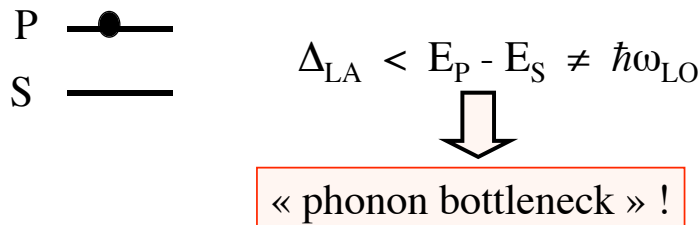
Avant de revenir à ce dernier mécanisme, il faut souligner que les multiples expériences inter-bande étaient difficiles à interpréter, et ne permettaient pas de dégager une image claire de la relaxation des porteurs confinés dans les boîtes quantiques. Une des raisons en est que ces expériences font nécessairement intervenir plusieurs porteurs (au moins deux), qui peuvent relaxer ou bien indépendamment (et différemment, dans le cas d'un électron et d'un trou, à cause de leurs états liés différents) ou bien de façon corrélée (par interaction coulombienne). Une autre raison est l'importante largeur inhomogène des transitions interbandes d'un ensemble de boîtes quantiques avec dispersion de taille.

Les expériences intra-bandes (plus « propres », puisque liées à une seule particule et beaucoup moins affectées par les effets de dispersion de taille) et les analyses théoriques plus fines des états énergétiques des boîtes quantiques, forgeront un cadre physique radicalement nouveau pour le phénomène de relaxation dans les boîtes quantiques.

The energy relaxation problem in Quantum Dots

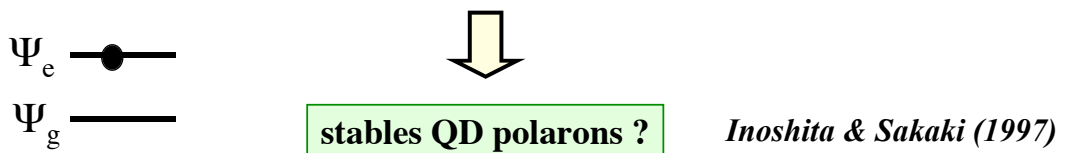
(1) Early studies : **relaxation in the « weak coupling » regime :**

The electron **CANNOT** emit irreversibly LO (or LA) phonons



(2) Present framework : **relaxation in the « strong coupling » regime :**

The electron can **NO LONGER** emit irreversibly LO phonons



Pour mieux le comprendre, il faut rappeler que les couplages aux phonons sont traités « à la massif » dans les études pionnières, c'est-à-dire, en tant que perturbations « faibles » dans le formalisme de la règle d'or de Fermi.

Or, comme discuté auparavant, les électrons des boîtes quantiques sont couplés de manière forte aux modes optiques du réseau. Ainsi, le formalisme de la règle d'or de Fermi est non seulement inapproprié, mais au fait complètement sans fondement pour ces structures, puisque le couplage de Fröhlich est pris en compte à tous les ordres pour former les états mixtes de polarons.

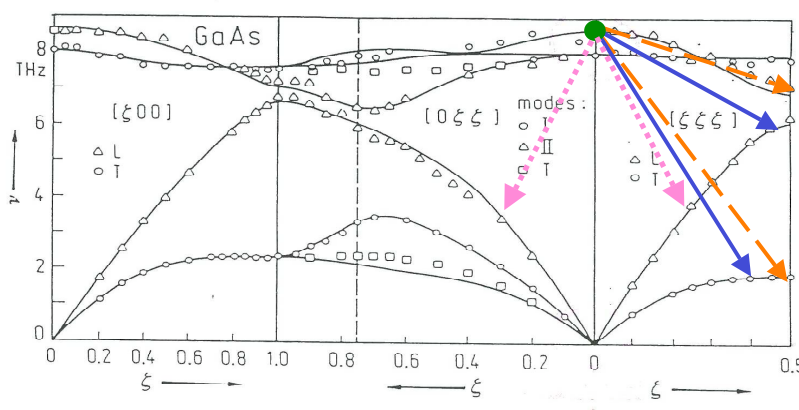
Le couplage à l'origine du mécanisme le plus efficace de relaxation énergétique pour un porteur chaud dans le massif, mène dans une boîte à la formation de nouveaux états stationnaires : les polarons. D'autre part, le cadre polaron n'altère en rien l'inefficacité des phonons acoustiques.

Ainsi, les polarons des boîtes quantiques semblent être des entités stables vis-à-vis des couplages usuels de relaxation prévalant dans le massif.

Comme souligné auparavant, le mécanisme que nous retiendrons pour l'étude de la relaxation énergétique dans les boîtes quantiques est celui lié au temps de vie fini des phonons optiques. En effet, on sait qu'un phonon LO massif est instable vis-à-vis des couplages anharmoniques du réseau. Typiquement, un phonon LO en centre de zone ($q \approx 0$) se désintègre en émettant deux phonons de plus basse énergie en ≈ 10 ps à $T = 4$ K (≈ 2 ps à $T = 300$ K). Différents chemins de désintégration sont possibles, comme on peut voir sur la figure ci-dessous.

LO phonon lifetime due to intrinsic anharmonic couplings

... phonons can emit irreversibly phonons !

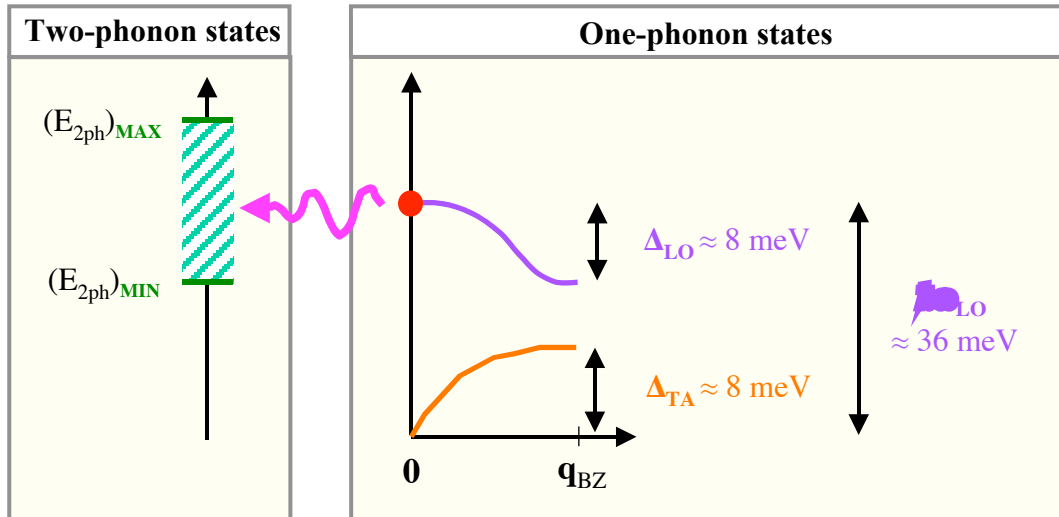


$V_{\text{ph-ph}}$ \rightarrow $\tau_{\text{LO}} \approx \text{few ps}$

Vallée et al (1991; 1994)

Energy window for anharmonic decay in bulk

Exemple : $1 \text{ LO} \rightarrow 1 \text{ LO} + 1 \text{ TA}$ process for $q = 0$ LO phonons in GaAs



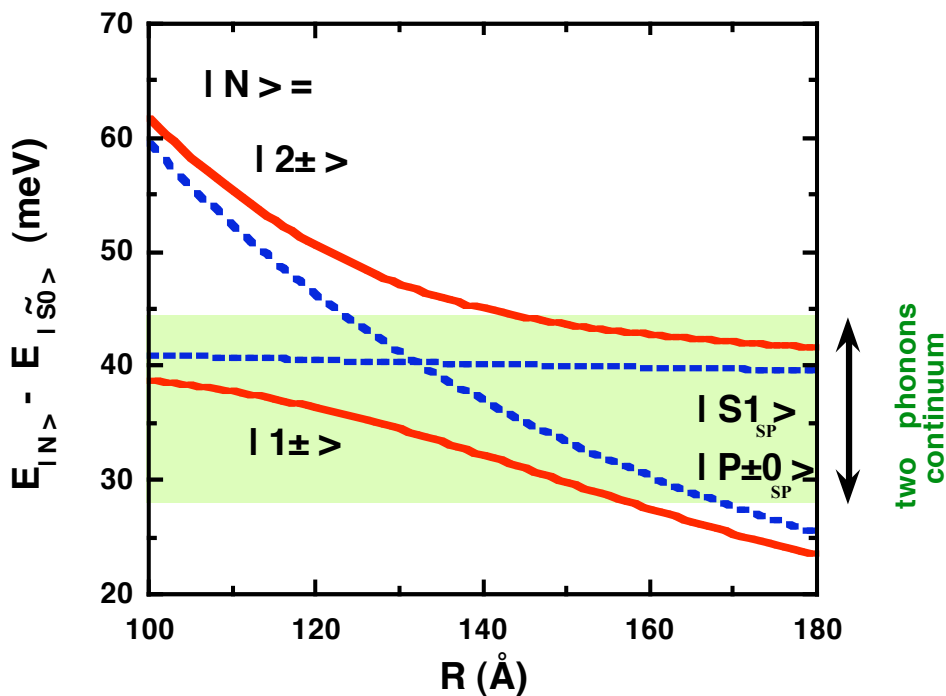
$$E_{2\text{ph}}(q_{\text{LO}}, q_{\text{TA}})_{\text{MIN}} = E_{2\text{ph}}(q_{\text{BZ}}, 0) = \epsilon_{\text{LO}} - \Delta_{\text{LO}} \quad (\approx 28 \text{ meV})$$

$$E_{2\text{ph}}(q_{\text{LO}}, q_{\text{TA}})_{\text{MAX}} = E_{2\text{ph}}(0, q_{\text{BZ}}) = \epsilon_{\text{LO}} + \Delta_{\text{TA}} \quad (\approx 44 \text{ meV})$$

Le couplage anharmonique fait toutefois apparaître une fenêtre énergétique associée à chaque chemin de désintégration, c'est-à-dire que le continuum à deux phonons vers lequel le phonon LO se désintègre est de largeur finie (conséquence des largeurs finies des dispersions pour chacun des deux phonons émis). On montre sur la figure les bornes pour le cas $1\text{LO} \rightarrow 1\text{LO} + 1\text{TA}$ (TA \equiv transverse acoustique). Le processus $1\text{LO} \rightarrow 2\text{LA}$ présente une fenêtre bien plus large : $E \in [0, 53] \text{ meV}$. Ces différents chemins ont été étudiés dans le GaAs massif, où, outre l'énergie totale, l'impulsion totale doit également être conservée (à un vecteur du réseau réciproque près).

Les couplages anharmoniques sont faibles : la largeur $\Delta_{2\text{ph}}$ d'un continuum reste très supérieure à \hbar/τ_{LO} , où τ_{LO} est le temps de désintégration vers ce continuum pour le phonon avec $q = 0$. De même, l'état initial est, pour chaque chemin possible, placé loin des bornes. Ces points justifient de l'utilisation usuelle de la règle d'or de Fermi pour évaluer τ_{LO} .

Energy window for anharmonic decay in QDs

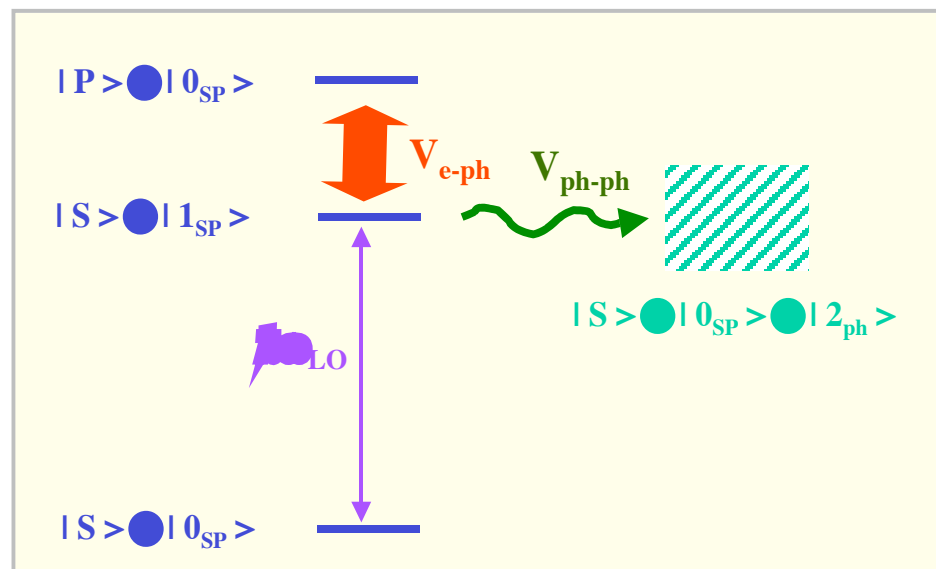


L'existence d'une largeur finie pour le processus de désintégration dans le massif se répercute sur la relaxation dans les boîtes. La figure montre comment les niveaux des boîtes se positionnent par rapport au continuum à deux phonons. Considérons d'abord les états découplés $|E>\otimes|N_{ph}>\equiv|EN_{ph}>$. L'état fondamental est $|S0_{SP}>$ (non montré) et le continuum à deux phonons est $|S0_{SP}>\otimes|2_{ph}>$ (bande sur la figure). On voit sur la figure les variations des énergies des états à un phonon $|S1_{SP}>$ et à zéro phonon $|P\pm 0_{SP}>$ d'une boîte « ronde » avec le rayon de la boîte, dans la région où ces états se croisent ($R \approx 130$ Å ; courbes en pointillé ; le zéro d'énergie est pris à l'état *polaron* fondamental $|\bar{S}0_{SP}>$ d'énergie $E(|\bar{S}0_{SP}>) \approx E(|S0_{SP}>)$). On voit que $|S1_{SP}>$ est, comme il se doit, toujours à l'intérieur du continuum à deux phonons.

Les énergies des états polarons issus du couplage de $|S1_{SP}>$ et $|P\pm 0_{SP}>$ sont également montrées. On voit qu'un des deux états est à l'extérieur du continuum dans une large plage de paramètres de boîte.

The energy relaxation problem in Quantum Dots

Two phonon-related couplings in QDs !



La description des états électroniques des boîtes doit tenir simultanément en compte les deux couplages liés aux phonons :

(i) le couplage de Fröhlich, qui mélange les états découplés à zéro et un phonon LO et mène à la formation d'états intriqués stables, les polarons ;

(ii) le couplage anharmonique, qui mène à la désintégration du mode à un phonon $|1_{SP}\rangle$ et apporte donc une instabilité à l'état découplé $|S1_{SP}\rangle$.

Il faut également tenir en compte deux particularité des boîtes quantiques, à savoir, que le continuum de désintégration (pour un chemin donné) a une largeur finie, et que certains des niveaux électroniques peuvent être placés à l'extérieur de ce continuum.

Il y a deux remarques à faire par rapport à la largeur finie du continuum à deux phonons:

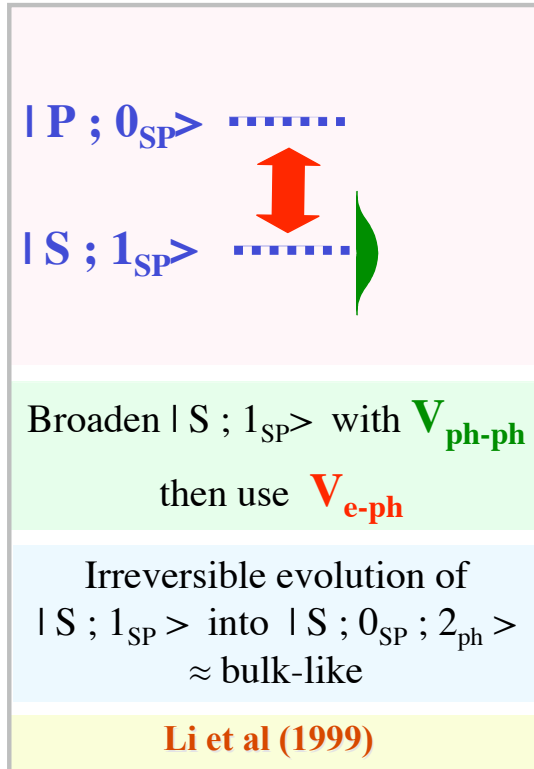
(a) Il faut se rappeler que le couplage électron-phonon dans une boîte quantique introduit un mode phonon particulier $|1_{SP}\rangle$. Comme pour la situation dans le massif, le couplage anharmonique sur l'état $|1_{SP}\rangle$ est faible et peut être traité en perturbation. On obtient dans le cas général l'inégalité $\hbar/\tau_{SP} \ll \Delta_{2ph}$, où τ_{SP} est le temps de vie, associé à un chemin particulier de désintégration, pour le *mode massif* à un phonon $|1_{SP}\rangle$. Cette inégalité rend non pertinent l'aspect « largeur finie » du continuum de désintégration pour l'évaluation de l'instabilité de l'état *découplé* $|S1_{SP}\rangle$. Il faut en outre souligner que $|1_{SP}\rangle$ est composé d'états phonon massifs de vecteurs d'onde $q \neq 0$, et temps de vie différent de celui τ_{L0} pour $q = 0$. Ainsi, en général, $\tau_{SP} \neq \tau_{L0}$.

(b) Un état à zéro phonon n'est pas directement couplé au continuum, mais indirectement, via son couplage à $|S1_{SP}\rangle$. Cette situation n'est pas sans rappeler celle de la physique atomique où un état stable (ou métastable) acquiert un temps de vie fini par couplage (« contamination ») radio-fréquence avec un état radiatif. On pourrait ainsi espérer qu'un effet analogue de contamination se présente également pour l'état à zéro phonon d'une boîte quantique, qui acquerrait un temps de vie fini par couplage (via le couplage de Fröhlich) au niveau instable à un phonon. Mais, en physique atomique, l'état métastable est toujours plongé dans le continuum radiatif (même s'il n'interagit pas avec directement), tandis que dans une boîte quantique, $|P_{\pm 0_{SP}}\rangle$ peut se trouver *en dehors* du continuum (c'est le cas du schéma présenté sur la figure précédente).

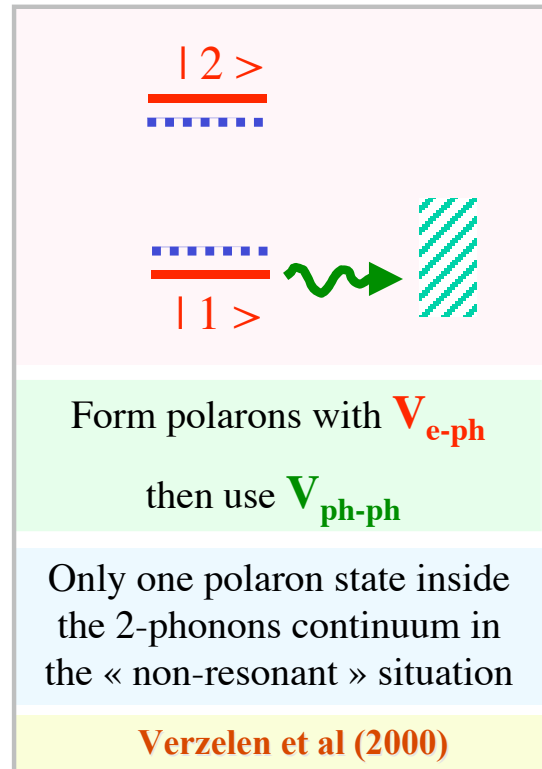
On reviendra plus loin sur ces deux dernières remarques.

Two descriptions of relaxation

« *semi-classical* » scheme



« *polaron* » framework



A ce jour, il n'y a pas de modèle général pour la relaxation, permettant de traiter simultanément les deux couplages V_{e-ph} et V_{ph-ph} .

Deux modèles ont été proposés pour décrire la relaxation dans une boîte quantique. Ils sont caractérisés par la prise en compte séquentielle des deux couplages, et diffèrent dans l'ordre dans lequel V_{e-ph} et V_{ph-ph} sont considérés :

(i) dans le modèle « semi-classique » de Li et al (1999), on considère d'abord l'instabilité due au couplage anharmonique sur l'état à un phonon, et ensuite son couplage par Fröhlich à l'état discret (stable) à zéro phonon ;

(ii) dans le formalisme « polaron » de Verzelen et al (2000), on diagonalise d'abord le couplage de Fröhlich pour former les états polarons, et ensuite on prend en compte le couplage anharmonique.

Les deux modèles devraient prédire la même dynamique de relaxation. Pourtant, ils sont parfois en total désaccord, comme discuté par la suite.

Time evolution involving discrete and unstable states

Li et al (1999) : Time-evolution of an *imaginary hamiltonian*

Initial state

$|P; 0_{SP}\rangle$

$|S; 1_{SP}\rangle$

$$|\Psi(t)\rangle = A_0(t) |P; 0_{SP}\rangle + A_1(t) |S; 1_{SP}\rangle$$

$$|\Psi(0)\rangle = |P; 0_{SP}\rangle$$

$$-i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} A_0 \\ A_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_P & V_{e-ph} \\ V_{e-ph}^* & E_S + \hbar\omega_{LO} - i\frac{\hbar}{2\tau_{SP}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_0 \\ A_1 \end{pmatrix}$$

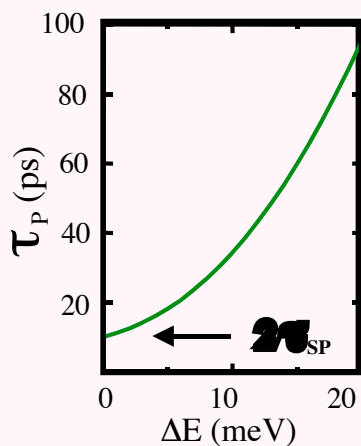
Survival probability

for the

$|P; 0_{SP}\rangle$ state

$$|A_0(t)|^2 \approx F_{osc}(t) e^{-t/\tau_P}$$

$$\frac{1}{\tau_P} \approx |\alpha_1|^2 \frac{1}{\tau_{SP}}$$



Polarons stationnaires ($\tau_{SP} = \infty$)

$$|2\rangle = \alpha_0 |P; 0_{SP}\rangle + \alpha_1 |S; 1_{SP}\rangle$$

$$|1\rangle = -\alpha_1^* |P; 0_{SP}\rangle + \alpha_0^* |S; 1_{SP}\rangle$$

$\Delta E = 2\epsilon$

$$|\alpha_1|^2 = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \frac{\delta}{\sqrt{\delta^2 + |V_{e-ph}|^2}} \right\}$$

α_1 = Weight of the 1-phonon state $|S; 1_{SP}\rangle$ in the stationnary upper polaron state

$|\alpha_1|^2$ = Fraction of time spent in the 1-phonon state $|S; 1_{SP}\rangle$ when $|\Psi(0)\rangle = |P; 0_{SP}\rangle$

Discutons d'abord le modèle « semi-classique », tel que développé par Li et al (1999 ; voir figures ci-dessus). Leur formalisme revient à la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps, dans la base restreinte des

deux états découplés, où l'énergie de l'état à un phonon possède une partie imaginaire à cause de son instabilité anharmonique (avec l'approximation supplémentaire $\tau_{SP} = \tau_{LO}$ liant les temps de vie τ_{SP} du mode optique $|1_{SP}\rangle$ et τ_{LO} du phonon massif avec $q=0$). La probabilité de survie dans l'état initial $|P_{\pm 0_{SP}}\rangle$ est une fonction oscillante amortie ; Li et al associent son taux d'amortissement $1/\tau_p$ au taux de relaxation de la population de l'état excité initial. Dans le régime de faible amortissement ($\hbar/\tau_{SP} \ll |\Delta E| = |E_P - (E_S + \hbar \omega_{LO})|$ et/ou $\hbar/\tau_{SP} \ll |V_{e-ph}|$), on obtient que le taux de relaxation est égal au produit du taux de désintégration du phonon $|1_{SP}\rangle$ par le poids (amplitude carrée) de la composante à un phonon dans l'état polaron stationnaire excité. Cela explique la valeur théorique $2\tau_{SP}$ pour le temps de vie à la résonance ($\Delta E = 0$; voir courbe sur la figure précédente), où les états à zéro et à un phonon rentrent avec égal poids dans chaque état polaron. Cela explique également l'importante augmentation du temps de vie du polaron excité lorsque celui-ci s'écarte de l'état à un phonon (pour $E_P \gg E_S + \hbar \omega_{LO}$).

Ces résultats portent à la double interprétation pour la relaxation en énergie dans une boîte quantique :

(i) en régime temporel, pour un électron initialement dans l'état $|P; 0_{SP}\rangle$. Le couplage de Fröhlich fait l'électron visiter l'état à un phonon $|S; 1_{SP}\rangle$. En absence de terme anharmonique, ces visites sont périodiques. Si par contre l'état à un phonon est instable, à chacune des visites l'électron a une probabilité non-nulle de donner son énergie au réservoir à deux phonons. C'est la description « ping-pong » ou « semi-classique » pour un processus irréversible (comme c'est par exemple le cas pour un électron semi-classique confiné dans un puits quantique sous champ électrique, qui visite périodiquement l'interface du potentiel triangulaire qui peut être franchi par effet tunnel ; la probabilité de fuite est dans ce cas égale au taux de visite (lié à son énergie cinétique) fois la probabilité de franchissement de la barrière) ;

(ii) en régime stationnaire, chaque état polaron possède une composante à un phonon. Le temps de vie d'un état polaron est égal au temps de vie de l'état phonon divisé par le poids de sa composante à un phonon.

On peut également interpréter d'une autre manière la relaxation dans le cadre semi-classique, comme schématisé sur la figure suivante.

Time evolution involving discrete and unstable states

physical interpretation of the relaxation mechanism at large detuning

$$\frac{1}{\tau_p} \approx \frac{2\pi}{\hbar} |V_{e-ph}|^2 \frac{\Gamma_{SP}/\pi}{\Gamma_{SP}^2 + \Delta E^2}$$

$$\Gamma_{SP} = \frac{\Gamma}{2\omega_{SP}}$$

Dans ce schéma, la relaxation résulte de la désintégration, induite par le couplage de Fröhlich, de l'état à zéro phonon dans le « continuum » engendré par l'état à un phonon élargi par le couplage anharmonique. Cette image est restreinte à la situation fortement non-résonante : $\Delta E \gg \Gamma_{SP}$, $|V_{e-ph}|$ (sur la figure, l'élargissement de l'état à un phonon a été exagéré). Dans ce cas, le mélange d'états introduit par le couplage de Fröhlich est *faible*, et le caractère polaron des états électroniques de la boîte est moins marqué.

Energy relaxation in the Strong Coupling Regime

IF

Electrons and Phonons were stable entities

THEN

Polarons would be stable entities

and

no desexcitation toward the ground Polaron level would be possible

BUT

Optical Phonons are unstable because of anharmonicity ($V_{\text{ph-ph}}$)

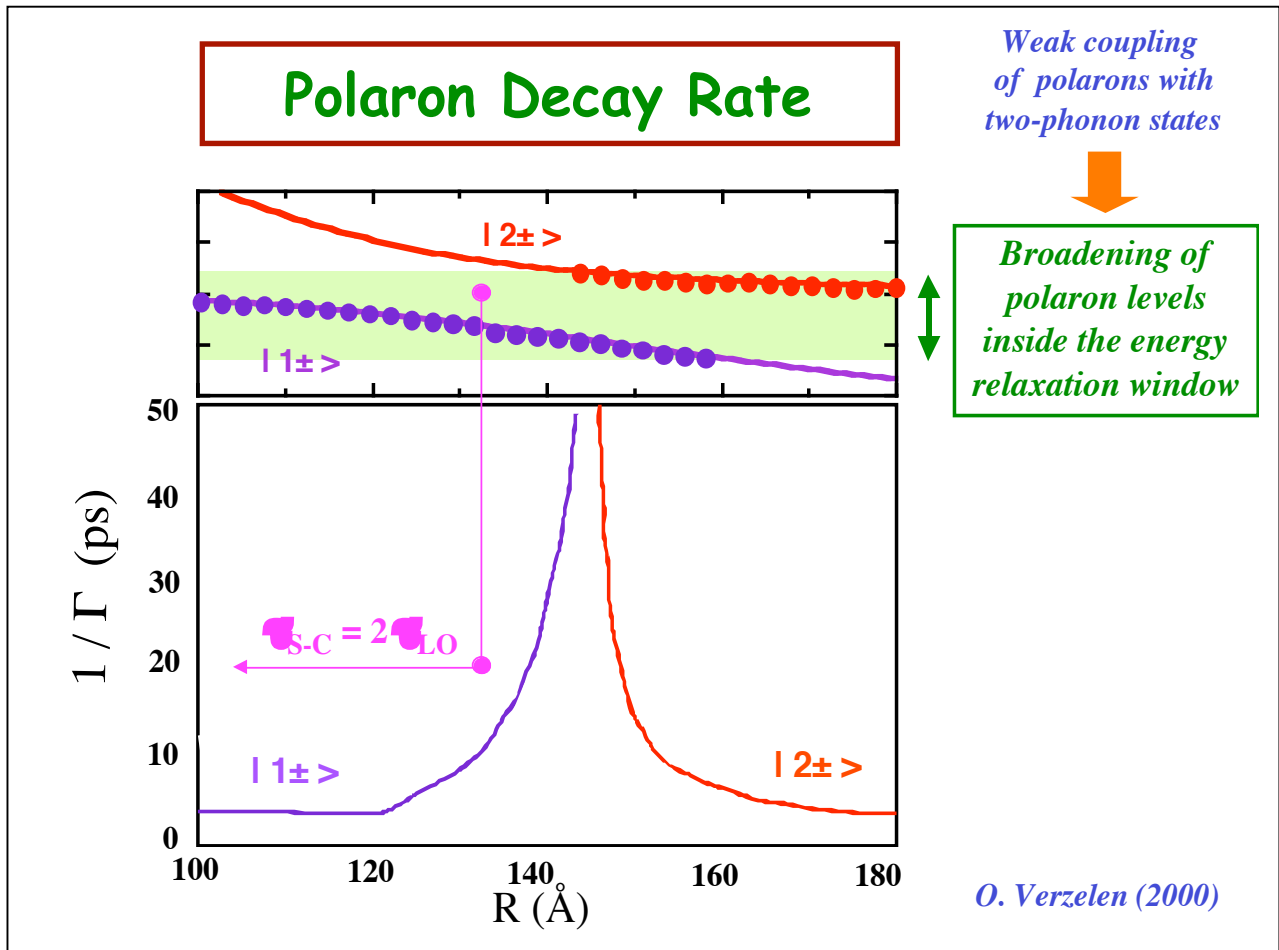
Vallée and Bogani, Phys. Rev. B43, 12049 (1991)

THEN

POLARONS may have a finite lifetime

Verzelen et al (1999)

Considérons à présent le modèle polaron. Dans ce cas, la relaxation est due à l'effet du couplage anharmonique sur les états mixtes électron-phonon de la boîte. Ces derniers possèdent une composante à un phonon LO, responsable du couplage polaron - réservoir à deux phonons.



Dans le travail de Verzelen et al (2000), le terme anharmonique est traité en tant que perturbation faible sur les états polarons. Les temps de vie des deux états polarons $|1\rangle$ et $|2\rangle$, obtenus à l'aide de la règle d'or de Fermi, sont montrés sur la figure comme fonctions du rayon de la boîte. L'encadré montre comment ces niveaux se positionnent en énergie par rapport au continuum à deux phonons du processus $1LO \rightarrow 1LO + 1 TA$. Il y a trois points à souligner concernant ces calculs :

(i) Comme discuté auparavant, un état polaron peut ne pas se trouver à l'intérieur du continuum associé à un chemin donné de désintégration. On ne peut pas appliquer la règle d'or de Fermi à ces états, qui résultent donc stables vis-à-vis du couplage anharmonique.

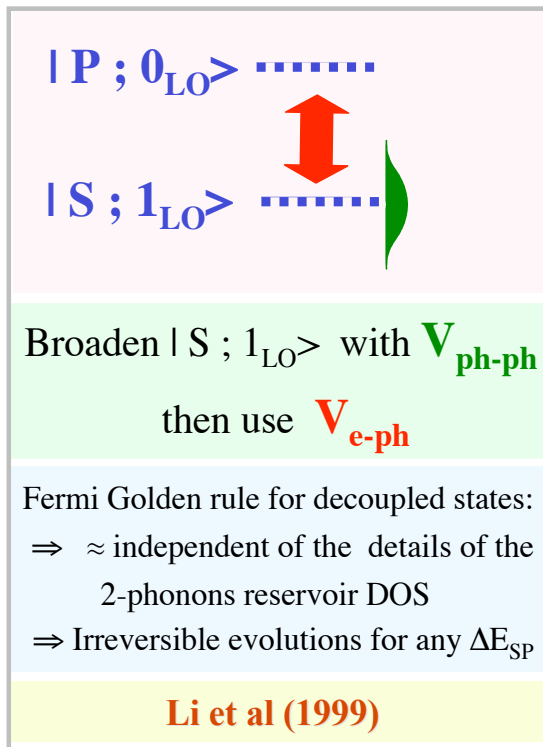
(ii) Le taux de désintégration d'un état polaron est, comme dans le modèle semi-classique, égal au produit du taux de désintégration du phonon $|1_{SP}\rangle$ par

le poids (amplitude carrée) de sa composante à un phonon. Mais, contrairement, au modèle de Li et al, τ_{SP} n'est pas simplement pris égal à τ_{LO} , mais plutôt calculé à l'aide de la règle d'or de Fermi pour le vrai état $|1_{SP}\rangle$ pris à l'énergie de l'état polaron.

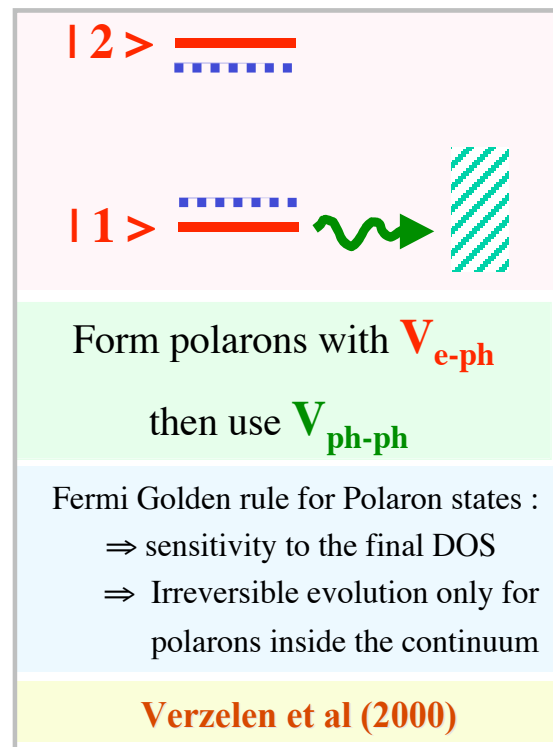
(iii) Finalement, la structure du continuum à deux phonons (c'est-à-dire, les dispersions des deux phonons émis) est prise en compte dans les calculs. Ces points aident à interpréter les importantes variations observées sur la figure, et en particulier deux résultats: (a) le fait que le temps de vie du polaron instable à l'anticroisement diffère considérablement de la valeur semi-classique de Li et al $\tau_{S-C} = 2 \tau_{SP} \approx 2 \tau_{LO} \approx 20$ ps à (autour de $R = 130$ Å ; repéré par la flèche) ; (b) le temps de désintégration du polaron instable loin de la résonance vaut $\tau_{SP} \approx 4$ ps < $\tau_{LO} \approx 10$ ps.

How to conciliate the two descriptions ?

« *semi-classical* » scheme



« *polaron* » framework



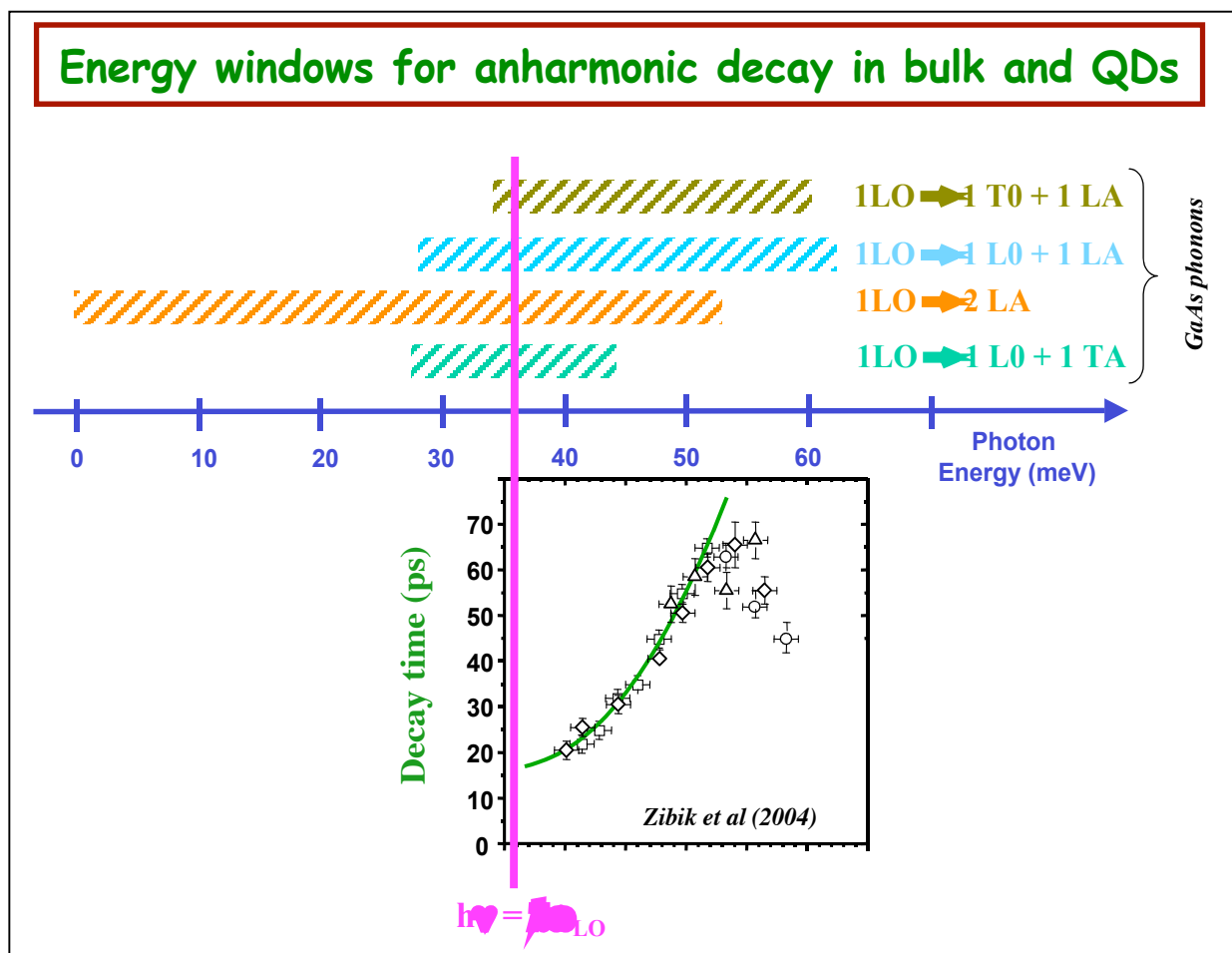
≠

Il y a plusieurs différences entre les deux modèles et leurs prévisions pour la relaxation dans une boîte.

Dans le modèle semi-classique, le temps de vie du mode $|1_{SP}\rangle$ est pris égal au temps de vie du phonon massif à $q = 0$: $\tau_{SP} = \tau_{LO}$. Mais, au fait, cette approximation ne joue aucun rôle effectif. En effet, dans les travaux de Sauvage et al (2002) et de Zibik et al (2004), τ_{SP} et V_{e-ph} ne sont pas calculés, mais plutôt pris comme paramètres d'ajustement pour interpréter la variation du temps de vie mesuré avec l'énergie du photon FIR, à l'aide de la formule analytique pour τ_p comme fonction de l'écart $\Delta E = E_P - (E_S + \hbar \omega_{LO})$. Les valeurs de τ_{SP} et V_{e-ph} sont obtenues directement par le temps mesuré (extrapolé) à la résonance $\Delta E = 0$ (où $h\nu = \hbar\omega_{LO} + |V_{e-ph}|$ et $\tau_p = 2 \tau_{SP}$) et par son comportement asymptotique pour $h\nu \gg \hbar\omega_{LO}$ (où $h\nu \approx \Delta E$ et $\tau_p \approx \tau_{SP} \Delta E^2 / |V_{e-ph}|^2$ et $\Delta E \approx h\nu$). Cette utilisation

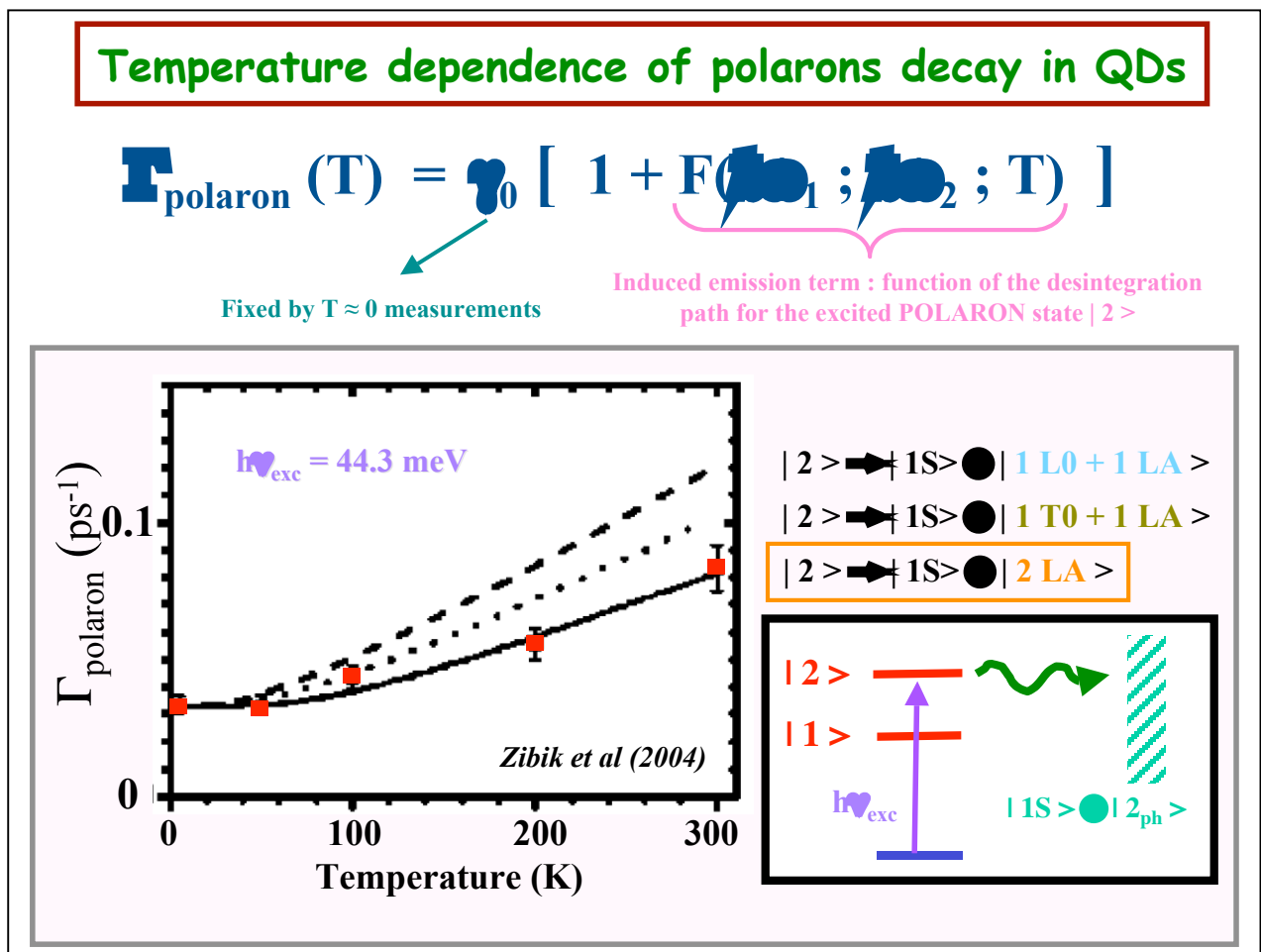
phénoménologique du modèle semi-classique s'avère très satisfaisante pour ajuster les mesures.

Le modèle polaron n'a jamais été, à proprement parler, directement comparé aux résultats expérimentaux. Les calculs de Verzelen et al prédisant l'existence d'états « stables » concernent un seul type de fenêtre (associée au processus $1LO \rightarrow 1LO + 1TA$). D'autres fenêtres existent, en particulier celle plus large pour le processus $1LO \rightarrow 2LA$. Zibik et al (2004) ont observé une discontinuité du temps de vie lorsque l'état excité dépasse la fenêtre associée à ce dernier chemin de désintégration, comme montré sur la figure ci-dessous.



Sur cette figure on a également schématisé différents chemins possibles pour la désintégration d'un phonon LO du GaAs avec $q = 0$, et leurs fenêtres respectives pour la désintégration des polarons des boîtes quantiques. Les phonons du InAs engendrent des fenêtres similaires mais aux bornes différentes. Le

comportement du temps de vie pour $h\nu > 53$ meV n'est pas bien compris. L'augmentation monotone dans l'intervalle $\hbar\omega_{LO} < h\nu < 53$ meV est par contre bien reproduite par le modèle semi-classique (courbe sur la figure précédente). De plus, dans cet intervalle d'excitation, on peut discriminer entre les différents chemins possibles de désintégration des états polarons à l'aide de mesures en température, sensibles aux densités d'états finaux (aux dispersions) des états du réservoir à deux phonons, comme montré sur la figure ci-dessous.



Ces mesures sont en effet bien reproduites par l'activation thermique de deux phonons LA de même énergie émis par le polaron excité $|2\rangle$ lors de sa désintégration (émission induite). En conclusion, les résultats de Zibik et al montrés sur les deux dernières figures semblent privilégier le chemin de désintégration avec émission de deux phonons LA. Le continuum à deux phonons associé à ce mécanisme est bien plus large que celui considéré théoriquement par Verzelen et al.

Il est impossible, à l'heure actuelle, de comparer quantitativement les prédictions des deux modèles : d'une part, le modèle semi-classique, indifférent aux détails du chemin de relaxation, est souvent employé de façon phénoménologique ; d'autre part, il n'y a pas à notre connaissance de calcul du temps de vie associé à l'émission de deux phonons LA dans le cadre du modèle polaron des boîtes.

La figure ci-dessous résume le status actuel de la problématique de la relaxation énergétique dans les boîtes quantiques de semiconducteurs :

Energy Relaxation Dynamics in QDs

Theory / Experiments : present status

- **Experimental side : coherent sets of decay-time measurements in the FIR domain** (Sauvage et al (2002) ; Zibik et al (2004))
- **Modelling side : two approaches :**
 - **« semi-classical » relaxation (Li et al (1999)) :**
 - used as a phenomenological description
 - irrelevance of relaxation windows
 - polarons always unstable entities
 - **« polaron » relaxation (Verzelen et al (2000)) :**
 - strong dependence on relaxation windows
 - polarons may become stable

➡ *necessity of an unified description for any energy detuning !*
 based on a proper simultaneous account of $V_{\text{ph-ph}}$ and $V_{\text{e-ph}}$

Du coté expérimental, on dispose maintenant d'un ensemble cohérent de résultats pour la variation du temps de vie comme fonction de l'énergie relaxée (plus précisément, de l'énergie d'excitation). Ces résultats montrent que le temps de vie augmente lorsque l'état optiquement excité (à composante

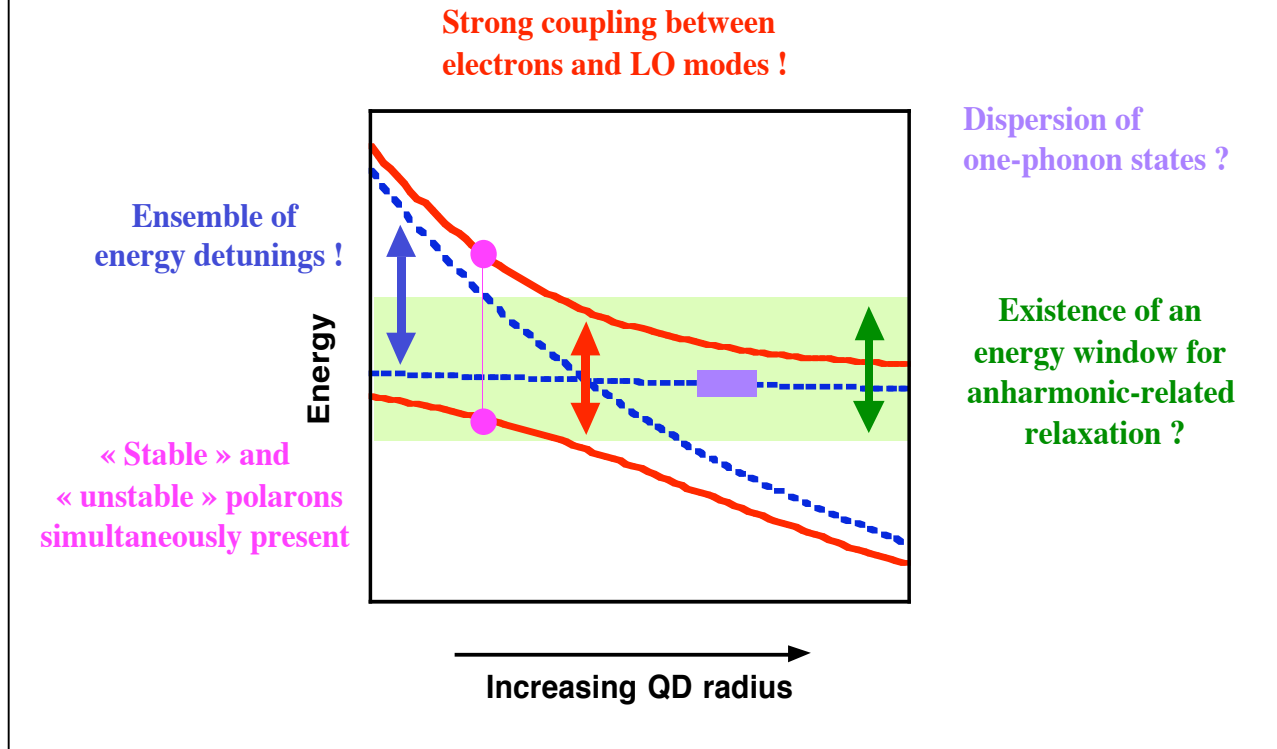
dominante de type P, à cause de la règle de sélection imposée par le couplage dipolaire à la lumière) s'écarte de la résonance avec l'état à un phonon optique formé à partir du fondamental électronique (de type S).

Du côté modélisation, on dispose de deux cadres distincts : les modèles « semi-classique » et « polaron ». Ces modèles ne sont pas, à l'heure actuelle, complètement compatibles. Il y a, en effet, un désaccord fondamental entre les deux modèles : lorsque l'on considère un chemin donné de désintégration, ils mènent à des résultats complètement différents dans le cas où le niveau discret à zéro phonon se trouve en dehors de la fenêtre de relaxation : des polarons toujours instables ou des polarons stables, respectivement.

Le premier modèle prédit que l'état excité est toujours instable, indépendamment de son écart ΔE par rapport à l'état à un phonon (avec lequel il se couple par l'interaction de Fröhlich). Il faut toutefois noter qu'une faiblesse de ce modèle est de ne pas conserver la population totale au cours du temps (à cause de la partie imaginaire dans l'hamiltonien 2×2). Ce point n'est pourtant pas décisif contre le modèle semi-classique. En effet, on peut travailler avec la matrice de densité, dans une base à trois niveaux, de façon à prendre en compte l'état fondamental de la boîte vers lequel la population évolue. Si l'on reprend l'approximation de Li et al dans le formalisme de Schrödinger, à savoir, que le couplage anharmonique introduit une relaxation depuis l'état à un phonon vers le fondamental, on aboutit aux mêmes conclusions pour l'évolution de la population depuis l'état excité peuplé à $t = 0$ (il faut néanmoins se souvenir que dans le formalisme matrice de densité toute relaxation de la population - ou « diagonale » - engendre également une relaxation des cohérences - ou « non-diagonale »).

Le deuxième modèle est très dépendant des détails du continuum à deux phonons : les bornes des fenêtres et les densités d'états (DOS) du continuum à l'énergie de l'état polaron. Bien sûr, c'est la fenêtre la plus large que gouvernera l'évolution irréversible dans ce modèle lorsque l'écart ΔE grandit.

Peculiarities of the energy relaxation in QDs

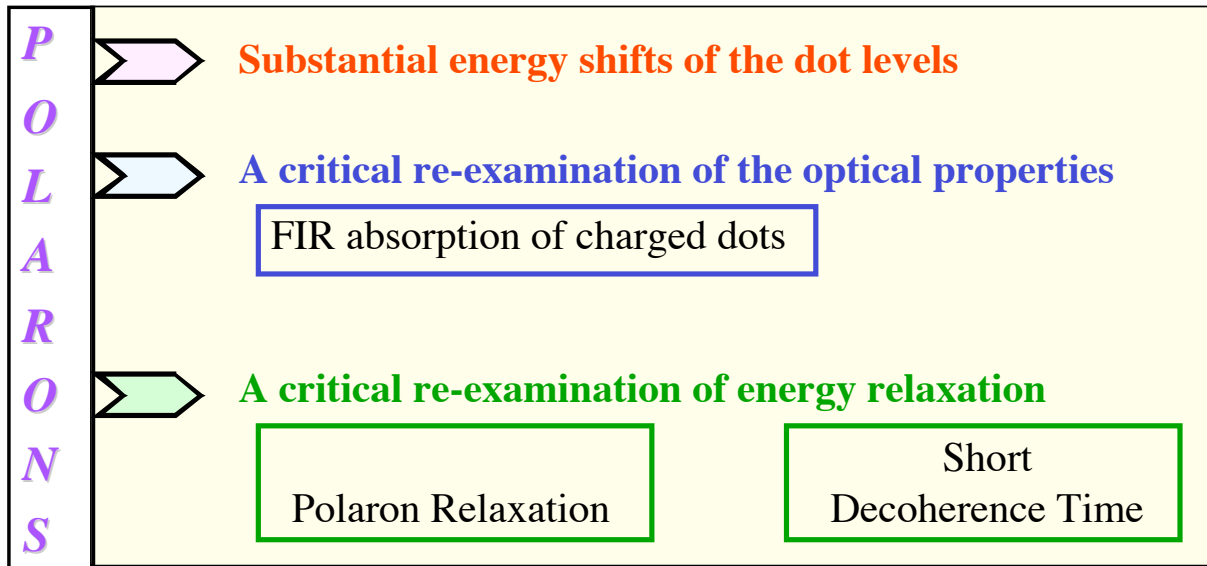


L'absence d'un modèle unique pour décrire la relaxation dans une boîte quantique tient aux nombreux aspects qu'il faut décrire simultanément (comme schématisé sur la figure) :

- (i) largeur finie pour le continuum à deux phonons associé à un chemin de désintégration possible ;
- (ii) possibilité d'un état en dehors de la fenêtre de relaxation ;
- (iii) existence de différents chemins possibles et donc de différentes fenêtres ;
- (iv) couplage fort de Fröhlich et couplage faible anharmonique ;
- (v) possibilité d'un éventuel effet associé à la largeur finie des états à un phonon ;
- (vi) mesures d'ensemble, faisant intervenir des boîtes de tailles variées.

Conclusions

Confined electrons and LO phonons are in the
strong coupling regime



Les difficultés de modélisation des processus de relaxation ne doivent néanmoins pas entacher le cadre global dégagé par les expériences, c'est-à-dire,

- (i) l'existence d'un couplage fort entre les électrons confinés et les vibrations du réseau ;
- (ii) le rôle important du couplage anharmonique dans la relaxation de la population d'un état excité d'une boîte.

Pour la suite, certaines voies pourraient être envisagées :

- mesures de temps de vie en fonction du champ magnétique ;
- analyse théorique plus fine du couplage à un continuum de largeur finie (à la « Fano » multi-canal).

References

- Benisty et al (1991) : H. Benisty, C. M. Sottomayor-Torres and C. Weisbuch,
Phys. Rev. B44, 10945 (1991)
- Bockelmann & Bastard (1990) : U. Bockelmann and G. Bastard, Phys. Rev.
B42, 8947 (1990)
- Bockelmann & Egeler (1992) : U. Bockelmann and T. Egeler, Phys. Rev. B46,
15574 (1992)
- Ferreira & Bastard (1999) : R. Ferreira and G. Bastard, Appl. Phys. Lett. 74,
2818 (1999)
- Inoshita & Sakaki (1992) : Phys. Rev. B46, 7260 (1992)
- Inoshita & Sakaki (1997) : Phys. Rev. B56, R4355 (1997)
- Li & Arakawa (1997) : X.-Q. Li and Y. Arakawa, Phys. Rev. B56, 10423 (1997)
- Li & Arakawa (1998) : X.-Q. Li and Y. Arakawa, Phys. Rev. B57, 12285 (1998)
- Sauvage et al (2002) :S. Sauvage, P. Boucaud, R. P. S. M. Lobo, F. Bras, G.
Fishman, R. Prazeres, F. Glotin, J. M. Ortega and J-M. Gérard, Phys. Rev.
Lett. 88, 174402 (2002)
- Uskov et al (1997) :
- Vallée and Bogani (1991) : F. Vallée and F. Bogani, Phys. Rev. B43, 12049
(1991)
- Verzelen et al (2000) : O. Verzelen, R. Ferreira and G. Bastard, Phys. Rev. B62,
R4809 (2000)
- Zibik et al (2004) :E. A. Zibik, L. R. Wilson, R. P. Green, G. Bastard, R.
Ferreira, P. J. Philips, D. A. Carder, J-P. R. Wells, J. W. Cockburn, M. S.
Skolnick, M. J. Steer and M. Hopkinson, Phys. Rev. B70, R161305
(2004)

CHAPITRE 3

*Etats du continuum électronique
des
boîtes quantiques auto-assemblées*

Unbound states in quantum heterostructures

R. Ferreira* and G. Bastard*#

* Laboratoire Pierre Aigrain – Ecole Normale Supérieure

24 rue Lhomond – F-75005 Paris (France)

Institute of Industrial Sciences - Tokyo University

4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8505 (Japan)

1) Introduction

A number of modern opto – electronics devices involve low dimensional semiconductor heterostructures. In Quantum Well (QW) lasers, for instance, the electron – hole recombination involves electrons and holes that are bound along the growth axis of the heterostructure but free to move in the layer planes. In a quantum dot (QD) laser the recombination takes place between electrons and holes that are bound along the three directions of space [1]. Yet, whatever the dimensionality of the carrier motion in the lasing medium, the feeding of the QW or QD lasers with carriers by electrical injection occurs from the bulk – like contacts through heterostructure electron/hole states that are spatially extended. Along the same line, in a unipolar QD – based photo - detector, the initial state is bound, the final state is delocalized. It is not often realized that the continuum of these extended states may show structure and that the eigenstates corresponding to certain energy regions of the continuum may display abnormally large amplitudes where the bound states are mainly localized in the heterostructures, thereby being prevalent in the phenomena of capture processes.

When looking at zero – dimensional heterostructures (QD's), it may also well happen that there exist bound two - particle states (e. g. electron – hole or

two electron states) that are superimposed to a two particle continuum. This feature is as a rule a necessity and recalls e. g. the ionization states of 2 electron atoms like He. In the context of QD's, the occurrence of bound electron – hole states interacting with a continuum gives rise to a number of important features, like increased decoherence and line broadening, changes in shape of the absorption coefficient. All these signatures have been experimentally evidenced.

In this short review, we shall present some of the recent findings about the continuum states of semiconductor heterostructures. In section II, we recall the QW continuum states. Then, in section III we switch to the continuum states of the QD single particle spectrum, in particular the part they play in the phonon – assisted capture and in the photo – detection of far infrared light. Section IV will be devoted to the two particle continuum states of QD's and to their role in ejecting carriers that were already bound to the QD.

II) The continuum states of quantum wells

Throughout this review, we shall confine ourselves to an envelope description of the one electron states. Further, we shall for simplicity use a one band effective mass description of the carrier kinematics in the heterostructures. Multi –band description [2] can be very accurate for the bound states, in fact as accurate as the atomistic – like approaches [3-5]. To our knowledge, the continuum states have not received enough attention to allow a clear comparison between the various sorts of theoretical approaches. Their nature is intricate enough to try in a first attempt a simplified description of their properties.

In a square quantum well, the Hamiltonian is:

$$H = \frac{p_z^2}{2m^*} + \frac{p_x^2}{2m^*} + \frac{p_y^2}{2m^*} + V_b(z) \quad (1)$$

where m^* is the carrier effective mass, taken as isotropic and position independent for simplicity. The potential energy $V_b(z)$ is $-V_b$ in the well and 0 in the barrier ($|z| > w/2$, where w is the well width). Because of the translational invariance in the layer plane, the total eigenstates are of the form

$$\Psi(x, y, z) = \frac{e^{i(k_x x + k_y y)}}{\sqrt{S}} \chi(z)$$

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2}{2m^*} (k_x^2 + k_y^2) + \varepsilon_z \quad (2)$$

where $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ is the wave-vector related to the free in-plane motion, S the layer (normalization) surface and ε_z and $\chi(z)$ are solutions of the one-dimensional (1D) Hamiltonian :

$$\left[\frac{p_z^2}{2m^*} + V_b(z) \right] \chi(z) = \varepsilon_z \chi(z) \quad (3)$$

Hence, disregarding the in – plane motion, one finds bound states (energies $\varepsilon_z < 0$) that are non degenerate and necessarily odd or even in z (see e. g. [5-7]). For energies $\varepsilon_z > 0$ the states are unbound. They are twice degenerate and correspond classically to an electron impinging on the well, being suddenly accelerated at the interface then moving at fixed velocity in the well, being suddenly decelerated at the second interface and moving away from the well at constant speed. Classically, the time delay experienced by the electron because of the well is therefore negative. Quantum mechanically, one can exploit the analogy between the time independent Schrödinger equation and the propagation of electromagnetic fields that are harmonic in time (see e. g. [8]). Then, the continuous electronic spectrum of the square well problem translates

into finding the solutions of Maxwell equations in a Perot - Fabry structure [9]. We shall therefore write the solution for $\varepsilon_z > 0$ in the form:

$$\begin{aligned}\chi_+(z) &= e^{ik_b(z+w/2)} + re^{ik_b(z+w/2)} & z \leq -w/2 \\ \chi_+(z) &= \alpha e^{ik_w z} + \beta e^{-ik_w z} & |z| \leq w/2 \\ \chi_+(z) &= te^{ik_b(z-w/2)} & z \geq w/2\end{aligned}\quad (4)$$

for a propagation from the left to the right. Here, k_b and k_w are the electron wavevectors in the barrier and in the well respectively

$$k_w = \sqrt{\frac{2m^*(\varepsilon_z + V_b)}{\hbar^2}} \quad ; \quad k_b = \sqrt{\frac{2m^*\varepsilon_z}{\hbar^2}} \quad (5)$$

The coefficients r and t are the amplitude reflection and transmission coefficients respectively. The intensity coefficients are respectively R and T with:

$$R = |r|^2 \quad ; \quad T = |t|^2 \quad ; \quad R + T = 1 \quad (6)$$

There exists a $\chi_-(z)$ solution at the same energy ε_z as $\chi_+(z)$. It corresponds to an electron motion from the right to the left. Neither χ_+ , nor χ_- is an eigenfunction of the parity operator with respect to the center of the well. Sometimes, it is desirable to get those solutions (in order e. g. to evaluate the bound – to – continuum optical absorption in the electric dipole approximation). One then takes the normalized symmetrical (even states) or antisymmetrical (odd states) combinations of χ_+ and χ_- [10].

The χ_+ and χ_- states are not normalizable. One should thus use wavepackets to get properly normalized wavefunctions. These wavepackets can be made reasonably narrow to assimilate them in the barrier or in the well to an almost classical particle moving at a constant velocity. The time evolution of these wavepackets (see Bohm [3] for a throughout discussion) reveals that for

most of the energies of the impinging electron, the time delay experienced by the packet due to its crossing of the well is negative, exactly like in the classical description. However, for certain energies there is a considerable slowing down of the packet by the quantum well. In fact, the packet is found to oscillate back and forth in the well, as if it were bound, before finally leaving it. The states for these particular energies are called virtual bound states. They also correspond to the Perot-Fabry transmission resonances:

$$k_w w = p\pi \quad (7)$$

For these particular energies the electron piles up in the well, while it is usually repelled by it, on account that its wavefunction should be orthogonal to all the other solutions, in particular the bound states.

The spatial localization of these particular solutions can also be evidenced by the display of the quantum well projected density of states versus energy [12]. To do so, one first completely discretizes the states for the z motion by closing the structure at $z = \pm L/2$, where $L \gg w$. One then sums over all the available states that have the energy ε , including the in-plane free motion. Since the free motion is bi - dimensional (2D), one should get staircases starting at the energies $\varepsilon = \varepsilon_z$ of the 1D problem. Each of the staircases is weighted by the integrated probability to finding the carrier in the well. The result of such a calculation is shown in fig.(1) for $L = 300$ nm and several w for electrons ($V_b = 195$ meV; $m^* = 0.067 m_0$). For a particle occupying uniformly the available space, the magnitude of each step would be w/L . One sees very clearly that this is not the case for the lower laying continuum energies. In particular, there exist particular energies where the integrated probability in the well is considerably larger than the classical evaluation.

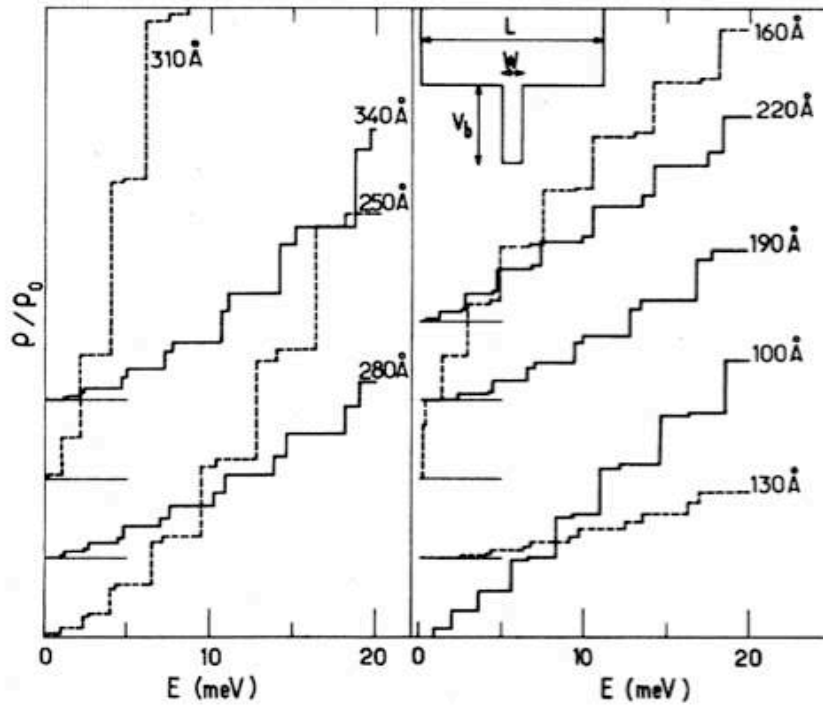


Fig.(1) Quantum – well projected density of states (in units of $\rho_0 = \frac{m^* S}{\pi \hbar^2}$) versus energy E. Curves corresponding to different w are displaced vertically for clarity. ρ/ρ_0 varies by 5% between two horizontal divisions. From [12].

These particular continuum states are thus candidates to play an important role in the phenomenon of capture processes. In such a capture event, a carrier, initially delocalized over the whole structure, undergoes a scattering where its final state is bound to the well. This scattering can be globally elastic (impurity scattering for instance) and thus amounts to transforming kinetic energy for the z motion into in-plane kinetic energy. The scattering can also be inelastic like for instance the absorption or emission of phonons. These phonons are either optical or acoustical. It has been known since a long time that the most efficient inelastic scattering in compounds semiconductors is the emission of longitudinal optical (LO) phonons by the Fröhlich mechanism (see e.g. [13-15]). Since III-V or II-VI semiconductors are partly polar and have most often two different atoms per unit cell, the longitudinal vibrations in phase opposition of these two

oppositely charged atoms produce a macroscopic dipolar field. A moving electron responds to this electric field. The interaction Hamiltonian between the electron and the LO phonons reads:

$$H_{e-ph} = -ie \sqrt{\frac{\hbar\omega_{LO}}{2\varepsilon_0\Omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_r} \right)} \sum_{\vec{q}} \frac{1}{q} \left(e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} a_{\vec{q}}^+ - e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} a_{\vec{q}} \right) \quad (8)$$

where Ω is the sample volume, ε_∞ and ε_r are the high frequency and static dielectric constants respectively and the LO phonons have been taken bulk – like and dispersionless. By using the Fermi Golden Rule, we can compute the capture rate of a QW continuum electron due to the emission of a LO phonon versus the well width w . This rate is averaged over the distribution function of the continuum electron. Fig.(2) shows the result of such a computation by assuming that the distribution function is a constant from the edge of the continuum to that edge plus $\hbar\omega_{LO}$ and taking bulk – like phonons [11]. One sees oscillations in the capture time whose amplitude diminishes at large w . Oscillatory capture times were also calculated by Babiker and Ridley [16] in the case of superlattices. These authors also took into account the effect of the superlattice on the optical phonons. Experimentally, to observe the oscillations, one uses time resolved interband photoluminescence: carriers are photocreated in the continuum in a structure that has been lightly doped in order to make sure that the luminescence signal arising from the ground QW transition has a rise time that is dominated by the arrival of the minority carriers. The predicted oscillations were not observed in regular QW's or superlattices because the capture time of electrons and holes was always too short compared to the experimental resolution. Deveaud et al [17] however managed to increase it by inserting narrow but high AlAs potential barriers between the GaAs wells and the Ga(Al)As barriers. The slowing down of the capture allowed for a reliable measurement of the capture time. A satisfactory description of the experimental

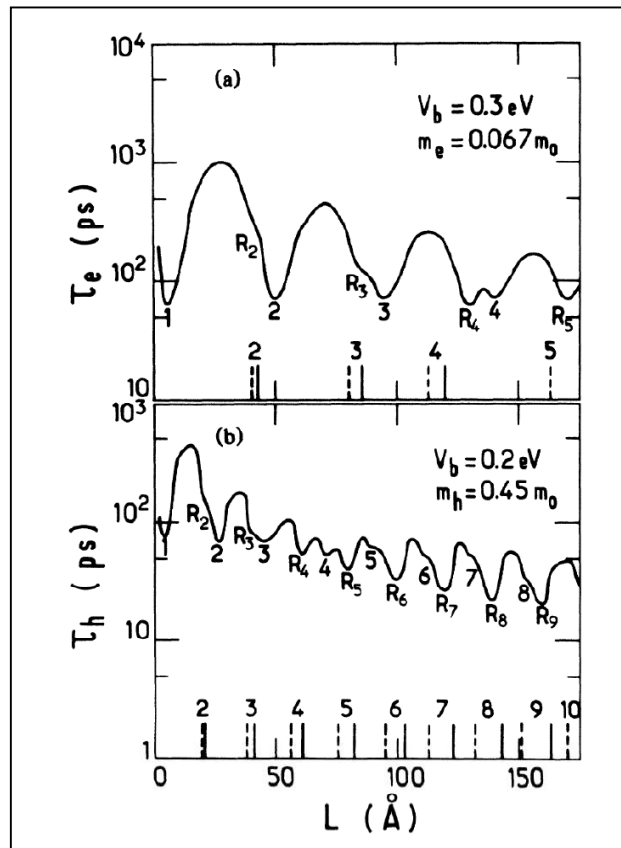


Fig.(2) The average capture times for electrons and holes are plotted versus the QW thickness L for electrons (a) and holes (b). From [11].

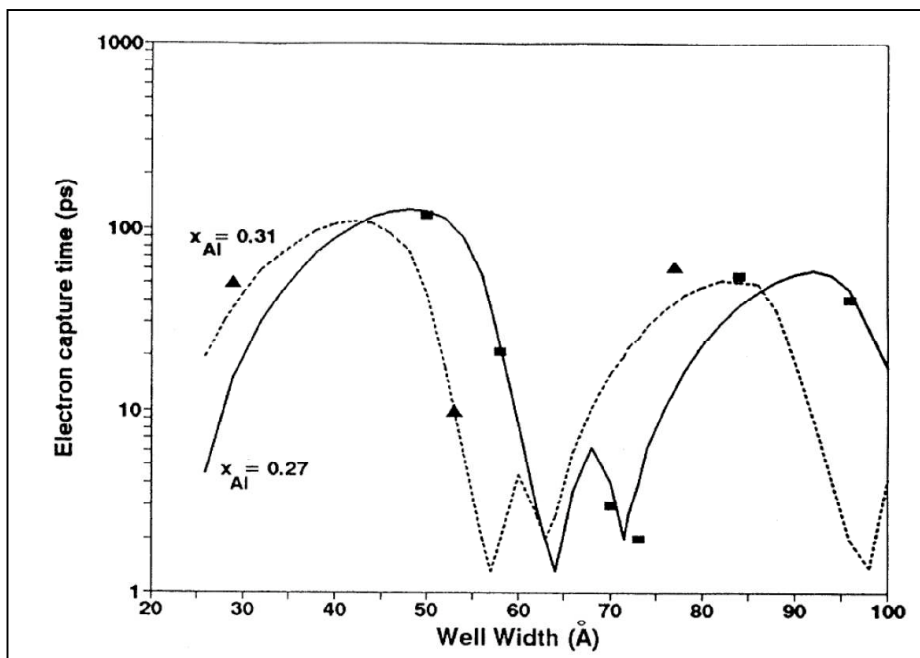


Fig.(3) Theoretical curves of the electron capture time as a function of the well width for $x_{Al} = 0.27$ and $x_{Al} = 0.31$. Symbols: experimental capture times for electrons. From [17].

findings (capture time versus well width) was achieved by taking into account the carriers capture by the well due to the emission of LO phonons (see fig.(3)). In actual QW lasers there are many carriers in the barriers or in the wells. They screen the Fröhlich interaction. The screening affects the capture rate and makes it to depend on the carrier concentration. This effect was studied by Sotirelis and Hess [18].

Note finally that the existence of resonant states is not restricted to square well problems. Generally speaking however the more sharply varying potentials display the more pronounced resonances.

III) One electron effects of continuum states in QD's: capture and photo-detection

A vast amount of literature is available in QD's, in particular those grown by Stransky – Krastanov mode (see e. g. [1]). Under such a growth technique a material A (say InAs) is deposited on a substrate B (say GaAs). The lattice constants of the two materials being different (in our specific example 7%), the subsequent growth of A on B accumulates strain energy because the lattice constant of A has to adjust to that of B. There exists a critical thickness of A material beyond which the growth cannot remain bi – dimensional. A three dimensional growth mode results. Under favorable circumstances this growth gives rise to droplets of A material, called dots or boxes, whose structural parameters (height, radius) depend on the growth conditions (impinging fluxes, substrate temperature, etc ..)

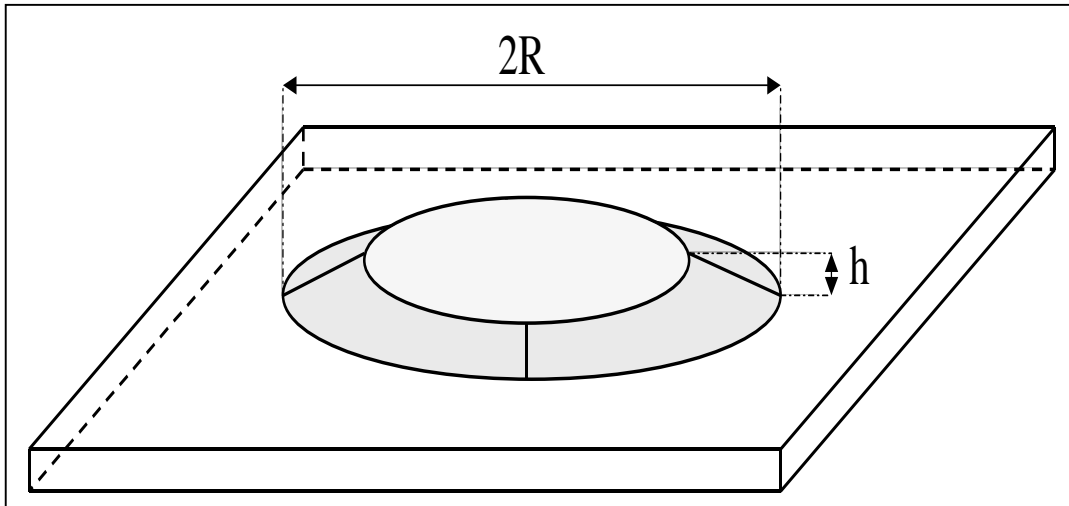


Fig.(4) Schematic representation of an InAs QD.

The InAs/GaAs dots have received a considerable attention because of their possible applications in telecommunications (lasers, photo-detectors). Even for these well studied objects, there exist controversies on their shape, sizes, interdiffusion etc ... In the following, we discuss QD's that retain a truncated cone shape with a basis angle of 30 degrees, a height $h = 2-3$ nm and a typical radius $R = 10$ nm (see fig.(4)). Our calculations therefore attempt to describe InAs QD's embedded into a GaAs matrix (or a GaAs/AlAs superlattice). The QD floats on a thin (0.5 nm) wetting layer. Within the one band effective mass model ($m^* = 0.07 m_0$), the QD strongly binds 2 states; one non degenerate state with S symmetry, which is the ground state, and a twofold degenerate (P_+ and P_-) excited state. A second S state is marginally bound as well as two D_+ , D_- states. Here S, P_{\pm} , D_{\pm} refer to the projection along z of the electron angular momentum in the effective Hamiltonian. Including spin, a dot could therefore load 12 non-interacting electrons. Actually, there are ample evidences by capacitance spectroscopy [19] that InAs QD's can load 6 electrons. The situation is less clear for the remaining 6 electrons because the one electron binding of these states is quite shallow making the stability of the multi - electron occupancy of these excited shells a debatable issue. Due to the

nanometric sizes of these QD's, there exist large Coulomb effects in QD bound states. Coulomb blockade (or charging) energies have been measured by capacitance techniques [19]. The Coulomb charging energy in the S shell amounts to be about 35 meV. This value is close from the numerical estimates one can make [20]. Fig.(5) displays the Coulomb matrix elements for S and P_± states [19] in cones versus the basis radius and keeping the basis angle constant (12°).

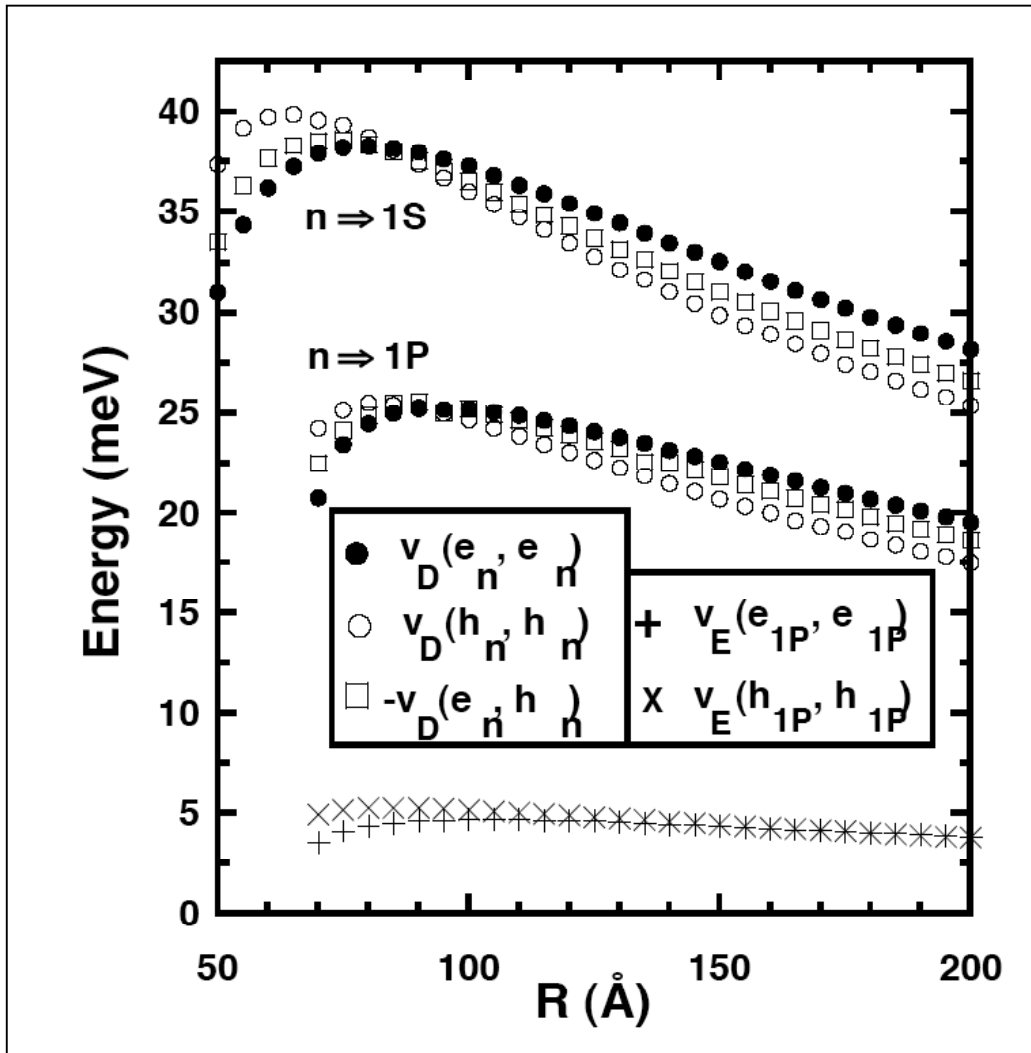


Fig.(5) Coulomb matrix elements for InAs QD's for 1S and 1P states versus dot radius R. Direct: v_D . Exchange: v_E . Cones. $V_e = 0.697$ eV, $V_h = 0.288$ eV. Basis angle: 12°, 0.333 nm thick wetting layer.

Besides the purely numerical calculations of the QD bound states, approximate solutions using the variational technique exist that are more flexible and still quite accurate. A numerical/variational method [21,22] proved useful to handle both single and multi – stacked dots. It consists in searching the best solutions that are separable in z and ρ and where the ρ dependent wavefunction is a priori given and depends on one or several parameters λ_i . The in – plane average of the Hamiltonian is then taken leaving a one dimensional effective Hamiltonian governing the z dependent part of the wavefunction. Because of the radial averaging procedure, the 1D Hamiltonian depends on the variational parameters λ_i of the radial part of the wavefunction. This Hamiltonian is numerically solved. Its lower eigenvalue is retained and its minimum versus the λ_i is searched. Because the z dependent problem is solved numerically, one gets several eigenvalues besides the lower one. They should in principle not be retained. Note however that if the potential energy were the sum of a z dependent part and of a radial part, the problem would be exactly separable and, for a given radial wavefunction, we would be allowed to retain all the eigenvalues of the effective z dependent motion. This suggests that if the problem is almost separable, then the excited states solutions of this variational ansatz may correspond to actual states of the real heterostructure. An example [22] of application of the separable method is shown in fig.(6) for a single QD, where the z dependent probability densities for the 1S and 1P $_{\pm}$ states are shown versus z , together with the wetting layer one ($V_b = 0.7$ eV). It is interesting to notice that the z dependent 1S and 1P probability densities look very much alike, as if the problem were a separable one.

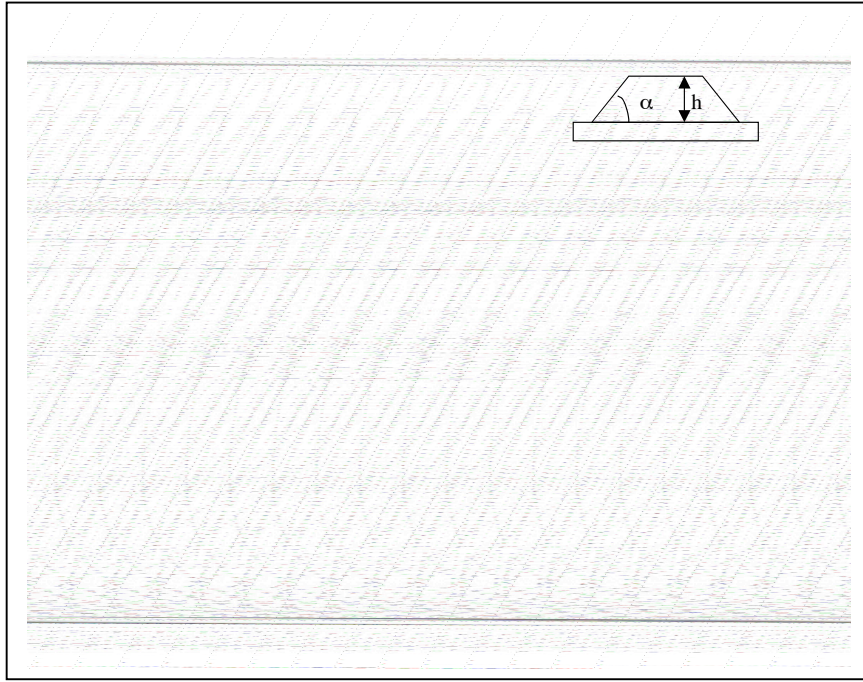


Fig.(6) Square modulus of the envelope functions versus z for different states of an InAs QD. Truncated cone. $V_e = 0.697$ eV, $R = 10$ nm, $h = 3$ nm, basis angle: 30° . 0.333 nm thick wetting layer. From [21].

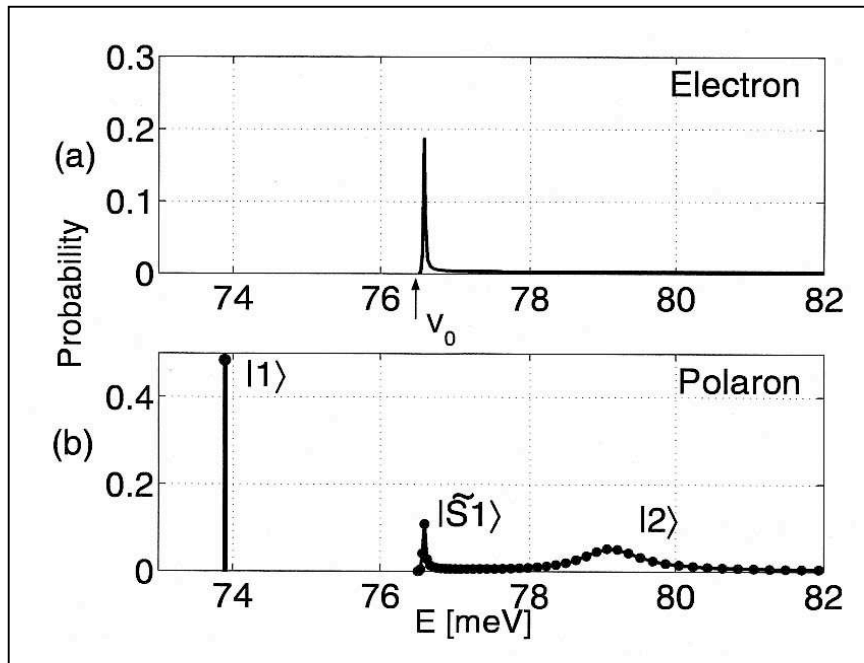


Fig.(7) a) Integrated probability that an electron in a p continuum state is found in the QD versus energy E . Spherical dot. $V_e = 76.49$ meV. $m_e = 0.067 m_0$. Dot radius: 8.55 nm. $R_b = 1500$ nm. There is a virtual bound state at 76.58 meV and a true bound state with s symmetry at $E = 41.59$ meV. b) Polaron states $|1\rangle$ and $|2\rangle$ that arise from the diagonalization of the Fröhlich Hamiltonian between the p continuum and the 1LO phonon replica of the bound s state. From [30].

The continuum states of a QD are in general impossible to derive algebraically, except in a few cases (e. g. spherical confinement [23,24]). So, very often, plane waves were used to describe these states in the numerical calculations. Sometimes, this approximation is not very good because, actually, a QD is a deep (a fraction of an eV) and spatially extended (thousands of unit cells) perturbation.

III-1) Capture

The carrier capture by a quantum dot due to the emission of an LO phonon is reminiscent of the capture by a QW. There is however a big difference between them. It is the fact that there exists a whole range of dot parameters where the capture is impossible because of the entirely discrete nature of the QD bound states [24-26]. If there is no bound state within $\hbar\omega_{LO}$ of the edge of the 2D continuum (the wetting layer states) then it is impossible to ensure the energy conservation during the capture process. In QW's instead, each z dependent bound state carries a 2D subband associated with the in plane free motion and any energy difference between QW bound states and the onset of barrier continuum can be accommodated (of course with a decreasing efficiency when increasing the energy distance between the bound state and the onset of the continuum).

When it is energy allowed the carrier capture by a QD is efficient (1- 40 ps). When the carrier capture by the emission of one LO phonon proves to be impossible, Magnusdottir et al [25] showed that the capture due to the emission of 2 LO phonons comes into play with an efficiency that is not very much reduced compared to that of the 1 LO process. Magnusdottir [24] also handled the case of one LO phonon capture when the dot is already occupied by 1 electron or 1 hole. The outcome of the calculations was that there is little difference on the narrowness of the parameter region that allows a LO phonon –

assisted capture. Experimentally, the carrier capture time has been deduced from the analysis of time – resolved photoluminescence experiments on QD ensembles. Auger effect was often invoked to interpret the data. In particular, a very fast electron capture was measured [27] in p – type modulation – doped QD's. Very recently, the transient bleaching of the wetting layer absorption edge was analyzed by Trumm et al [28]. A fast (3ps) electron capture time was deduced from the experiments. This time was independent of the density of carriers photoinjected into the wetting layer.

In QD's it is now well established [29] that the energy relaxation among the bound states and due to the emission of LO phonons cannot be handled by the Fermi Golden Rule whereas this approach works very nicely in bulk and QW materials [13]. The coupling to the LO phonon is so strong compared to the width of the continuum (here only the narrow LO phonon continuum since we deal with the QD discrete states) that a strong coupling between the two elementary excitations is established with the formation of polarons. The existence of polarons was confirmed by magneto-optical experiments [30]. Since the QD's may display virtual bound states it is an interesting question to know whether a strong coupling situation could be established between the continuum electron in a virtual bound state and the LO phonons. If it were the case, the notion of capture assisted by the (irreversible) emission of phonons should be reconsidered. To answer this question, Magnusdottir et al [31] studied the case of a spherical dot that binds only one state (1s) while the first excited state 1p, triply degenerate on account of the spherical symmetry, has just entered into the continuum, thereby producing a sharp resonance near the onset of this continuum. The energy distance between 1s and 1p was first chosen equal to the energy of the dispersionless LO phonons, in order to maximize the electron - phonon coupling. The calculations of the eigenstates of the coupled electron and phonons reveal that polaron states are indeed formed. In addition, one of

the two polarons become bound to the QD while the other is pushed further away in the continuum (see fig.(7)). So, the coupling to the phonons has changed the nature of the electronic spectrum. However, this situation is rather exceptional and as soon as one detunes the electronic energy distance from the phonon, the polarons are quickly washed out.

Very recently, Glanemann et al [32] studied the phonon – assisted capture in a QD from a 1D wire by quantum kinetics equations and found significant differences from the semi-classical predictions. Particularly, because of the short time scale involved in the capture, the QD population is not a monotonically increasing function of time, even at low temperature where there is no available phonons to de-trap the carrier.

III-2) Photo-detection

Since the conduction and valence band discontinuities between QD's and their hosts are usually a fraction of an eV, the QD's are inherently tailored to be used in the photo-detection of infrared light, ranging typically from 30 meV to 400 meV. There have been indeed several studies of photo-detectors based on InAs QD's (see e. g. [33-50])

In addition, the discrete nature of their lower lying eigenstates allows, at first sight, a photo-ionization for normal incidence that should be of the same order of magnitude as the photo – absorption for light propagating in the layer plane with its electric field lined along the z axis. For QW structures, the so – called QWIP devices, only the latter is allowed, forcing the use of waveguide geometry to detect light [51]. Besides, the nature of the QD continuum is largely unexplored and it would be useful to know if there are certain energies in these continuums that influence markedly the photo-absorption. In this respect,

Lelong et al [50] reported a theoretical analysis of Lee et al data [49] that correlated features of the photo-absorption to the virtual bound states of the QD's. Finally, the link between the QD shape and the nature of the photo-absorption, if any, remains to be elucidated. We shall show that flatness of actual InAs QD's not only influences the QD bound states but also shapes the QD continuum. In practice, the only continuum states that are significantly dipole – coupled to the QD ground bound state are also quasi – separable in ρ and z and display radial variations in the quantum dot region that resemble the one of a bound state. Also, like in QW's, the $E//z$ bound – to – continuum (B-C) absorption is considerably stronger than the $E//x$ (or y) one. In addition, the $E//z$ B-C QD absorption is almost insensitive to a strong magnetic field applied parallel to the growth axis, in spite of the formation of quasi Landau levels (again like for QW's). All these features point to regarding the photo-absorption of InAs QD's as being qualitatively similar to the QW's one, although there is some room left for recovering a strong $E//x$ (or y) B-C photo-absorption, as discussed below. The continuum states of a QD are in general impossible to derive algebraically, except in a few cases (e. g. spherical confinement [23,24]). So, very often, plane waves were used to describe these states in the numerical calculations. Sometimes, this approximation is not very good because, actually, a QD is a deep (a fraction of an eV) and spatially extended (thousands of unit cells) perturbation.

The structures we shall discuss were grown by MBE and consist of periodic stacks of InAs QD planes embedded into a GaAs/AlAs superlattice [37,50]. Since the period is small (≈ 10 nm) the QD's line up vertically, on account of the strain field. The 1 nm thick AlAs layers were Si-doped to load the QD's with one electron on average (see fig.(8) for a sketch [53]). A comparison was made between QD/GaAs and QD/GaAs/AlAs periodic stacks.

The latter devices display better performances due to a significant reduction of the dark current [37,52].

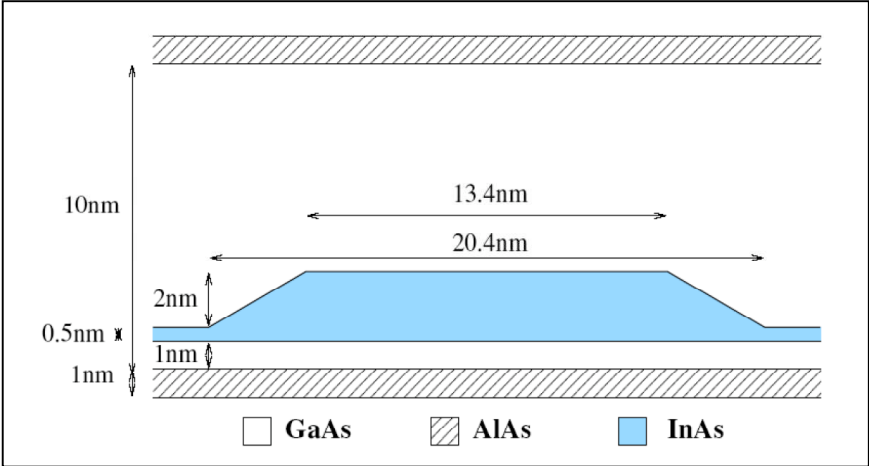


Fig.(8) Schematic representation of the supercell including the dot and its width. Period $d = 11 \text{ nm}$. From [51].

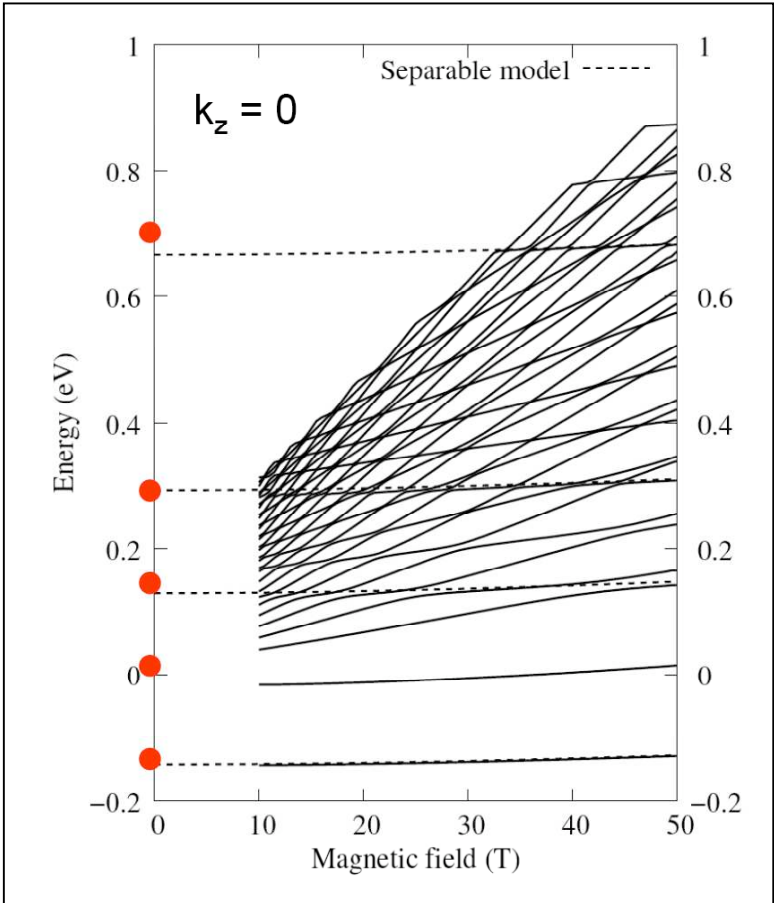


Fig.(9) Calculated energy levels with S symmetry versus magnetic field. The dashed lines are the results of the separable model with a Gaussian radial function. $k_z = 0$. From [51].

The QD's are modeled by truncated cones with a height 2 nm, a basis radius $R = 10.2$ nm and a basis angle of 30° . The one electron states were calculated from a numerical diagonalization [52,53] of the hamiltonian:

$$H = \frac{p^2}{2m^*} + V(\rho, z) + \frac{1}{2} \omega_c L_z + \frac{1}{8} m^* \omega_c^2 \rho^2 + \delta V(\vec{r}) \quad (9)$$

where the magnetic field \mathbf{B} is taken parallel to z , $\omega_c = eB/m^*$, $V(\rho, z)$ is the isotropic part of the QD confining potential and δV any potential energy that would break the rotational invariance around the z axis (e. g. if the QD's have an elliptical basis, if there exist piezo – electric fields, ...). The dots are bounded by a large cylinder with radius $R_C = 100$ nm. Because the confining potential depends periodically on z , the eigenstates of H can be chosen as Bloch waves labeled by a 1D wavevector k_z with $-\pi/d < k_z \leq \pi/d$.

A Fourier - Bessel basis was used at $B = 0$ while at $B > 10$ T we use a Fourier - Landau basis. The conduction band offset between InAs and GaAs (respectively between GaAs and AlAs) was taken equal to 0.4 eV (1.08 eV) while the effective mass $m^* = 0.07 m_0$ as obtained from magneto – optical data [30]. Fig.(9) shows the calculated Landau levels with S symmetry of a GaAs/AlAs/QD superlattice versus $B \geq 10$ T at $k_z = 0$. The extrapolation of the fan chart to $B = 0$ are marked by circles. They are roughly: 16 meV, 144 meV, 293 meV and 701 meV. Two states with S symmetry and a negative energy do not belong to a fan. These are in fact the two (1S and 2S) bound states of a single dot that are very little affected by the periodic stacking. The dashed lines are the results obtained from the separable model with a Gaussian variational wavefunction for the in – plane motion. It is quite remarkable that the $B = 0$ solutions of the effective 1D Hamiltonian are so close from the numerical data not only for the ground state but also for all the excited solutions in the continuum with S symmetry. In principle only the lowest eigenvalue (the ground energy) should be retained in the variational approach. All the excited

states (for the z motion since the in-plane motion is locked to the best Gaussian for the ground state) are a priori spurious: the Hilbert space retained in the ansatz may be too small to correctly describe the excited states. However, if the problem were separable in z and ρ , all the different solutions for the z motion would be acceptable. The fact that the variational approach works so well suggests strongly that the problem is quasi – separable. In fact, it is the flatness of the dots that leads to the quasi-separability. Since the InAs dots are so flat ($\hbar \ll R$), any admixture between different z dependent wavefunctions costs a very large amount of kinetic energy and, in practice, all the low lying states, bound or unbound, display similar z dependencies.

There are however distinct signatures of the non separability in the $B \neq 0$ spectrum in fig.(9). In a truly separable problem, the Landau levels of two distinct $B = 0$ edges E_l and E_r for the z motion should cross at fields B such that:

$$n\hbar\omega_c + E_l = n'\hbar\omega_c + E_r \quad (10)$$

The non separability replaces the crossings by anti-crossings. They are quite small (the lowest anti-crossing in fig.(9) that shows up near $B = 40$ T is only a few meV's wide and certainly much smaller than the separable terms (about 150 meV). Hence, even for the continuum states, one can conclude that the small aspect ratio of the InAs QD's ($\hbar/R \approx 0.2$) influences most strongly the energy spectrum.

Let us now attempt to quantify the effect of the QD on the energy spectrum of a GaAs/AlAs/InAs(wl) superlattice in which the InAs dot has been removed but all the other parameters remain the same as before. This 1D superlattice has its first miniband that starts at ≈ 19 meV. The other $k_z = 0$ edges are located at 151 meV, 293 meV and 699 meV. The appearance of low lying bound states and the red shift of the first excited state witnesses the presence of the attractive QD. Conversely, the superlattice effect deeply

reshapes the QD continuum. Without superlattice, the onset of the continuum for an isolated dot would be at -15 meV (edge of the narrow wetting layer QW); with the superlattice it is blue - shifted at $+16$ meV. Therefore, it is in general impossible to disentangle the QD effects from the superlattice effects. In no case can one assume that one effect is a perturbation compared to the other.

The optical absorption from the ground state $|1S; k_z\rangle$ to the excited states (bound or unbound) $|nL; k_z\rangle$ can now be calculated using:

$$\alpha(\omega) \propto \sum_{nL, k_z} \left| \langle \psi_{nL, k_z} | \vec{\epsilon} \cdot (\vec{p} + e\vec{A}_0) | \psi_{1S, k_z} \rangle \right|^2 \delta(E_{nL, k_z} - E_{1S, k_z} - \hbar\omega) \quad (11)$$

where $L = S, P_{\pm}, \dots, A_0$ is the vector potential of the static field and ϵ the polarization vector of the electromagnetic wave. We have only retained the vertical transitions in the first Brillouin zone. In z polarization and within the decoupled model, we expect that the only non vanishing excited states probed by light are the $L = S$ states shown in fig.(9). This expectation is fully supported by the full calculation as shown in fig.(10). The main difference between the full calculation and the predictions of the separable model is the double peak that appears near 0.26 eV at $B = 35$ T. It is a consequence of the anti-crossing discussed previously. Quite striking is the insensitivity of the absorption spectra to the magnetic field. It is reminiscent of the QW behavior, where it is known that, besides band non - parabolicity, the intersubband spectrum should in an ideal material be B - independent for z polarized light.

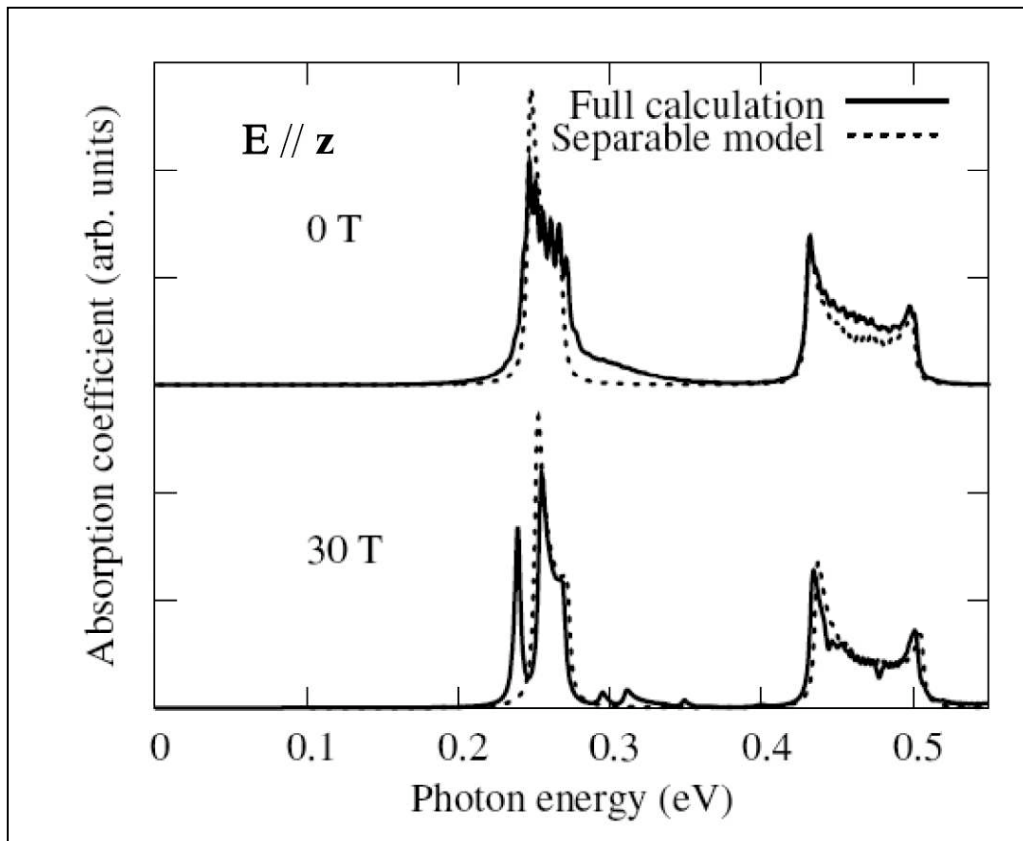


Fig.(10) Absorption coefficients versus photon energy at $B = 0$ and $B = 30\text{T}$ calculated by two models for $\epsilon//z$. From [51].

It was thought that QD's could lead to infrared absorption for x or y polarized light while QW's respond only to z polarization. Actually, this expectation is frustrated by the lateral size of regular dots ($R \approx 10\text{ nm}$) which allows several states of different L to be bound. Hence, all the oscillator strength for the x polarization is concentrated on the bound - to - bound S - P transition that takes place near 50 meV. Very little is left for the S - to - continuum (P) transitions and the photodetection in this polarization is not efficient. A way to remedy this drawback is to push the ground P states in the continuum, transforming them into virtual bound states (Note that the flatness of the QD's makes the virtual bound state for the z motion to occur at very high energy). This takes place for $R \approx 5.8\text{ nm}$. An example of the drastic changes in the

oscillator strength for x polarization is shown in fig.(11) at $B = 0$ and $k_z = 0$ between S and P levels in dots with decreasing radius. Starting from a large dot ($R = 7\text{nm}$) where the P level is bound and exhausts all the oscillator strength, the QD radius decreases down to 4.5 nm leading to a broadened peak in the continuum whose amplitude decreases with increasing energy in the continuum.

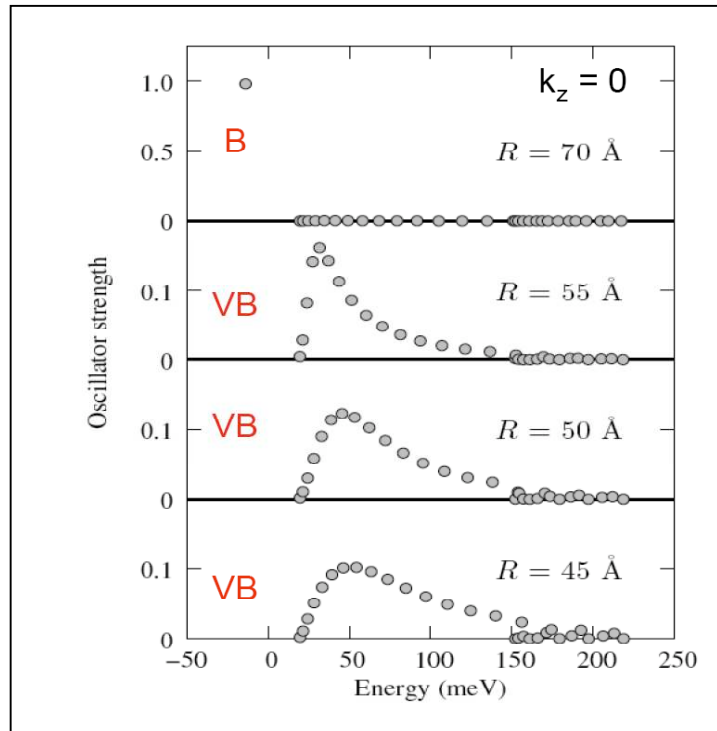


Fig.(11) Oscillator strength versus transition energy from the ground S state to the first 30 P states at $B = 0$, $k_z = 0$ and for several basis radius. $\epsilon//x$. The ordinate in the case $R = 70\text{ \AA}$ is 5 times bigger than the others. From [51].

To conclude this section, we show in fig.(12) a comparison between the calculated and measured absorption in GaAs/AlAs/QD superlattices for z polarization [52]. It is seen that a reasonably good description of the experimental absorption is obtained by the calculations, despite our neglect of the inhomogeneous broadening due to fluctuating R from dot to dot. This is probably due to the fact that the ideal spectra are already very broad due to the large energy dispersion of the final states.

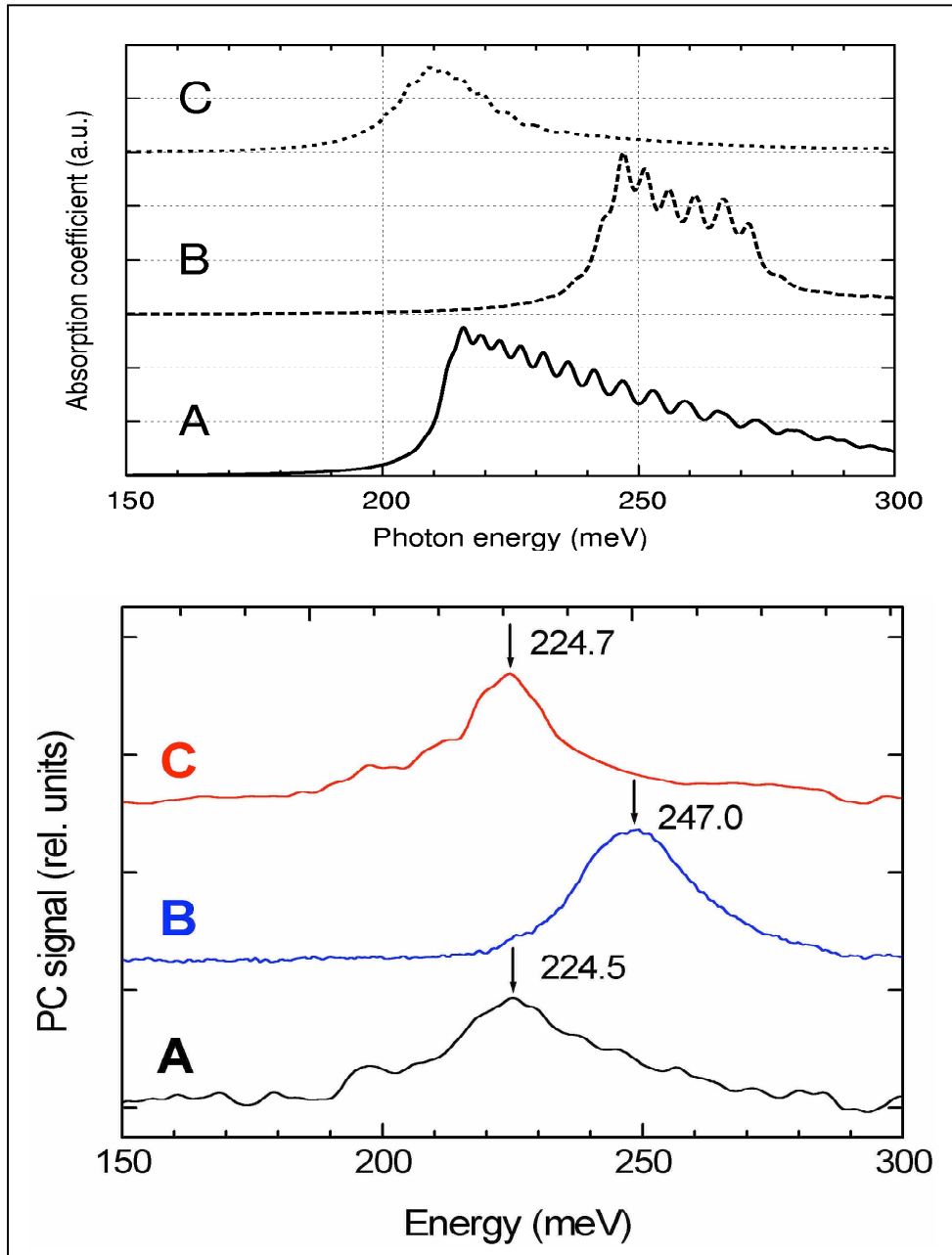


Fig.(12) Comparison between the calculated absorption spectra and measured photoconductivity spectra of InAs QD's versus photon energy.

Adapted from [20] and [50,51].

In summary, it appears that the continuum of the QD's, which plays a decisive part in the light absorption, depends sensitively on the surrounding of the dots (the superlattice effect). However, the photo-response is deeply affected by the flatness of these objects, to a point that most of the infrared absorption features look very much the same as those found in QW structures, except if

special QD parameters are carefully designed.

IV) 2 particle continuum states in QD's

In QD's, one often deals with many particle states: even in a single undoped QD the radiative recombination involves at least one electron – hole pair. When several particles come into play, one should wonder about their excited states. It may very well happen that the energy of a *discrete excited* two particle state lays inside a *mixed continuum* of states that corresponds to a situation where one of the two particle lays in a lower state (possibly the ground state) while the other has been ejected in the continuum. A well known example of such a feature occurs in He atoms for the doubly excited 2P-2P discrete state whose energy is larger than the mixed bound - continuum states formed by keeping one electron in a 1S orbital while the other belongs to the continuum. It is our implicit use of one particle picture that often leads us to the wrong conclusion that the product of two discrete states should necessarily belong to the discrete part of the two particles spectrum.

Two particles effects are important for the capture/ejection of one carrier inside/outside a QD. They are therefore the agent that links the QD' bound states, with their inherently low number, to the macroscopic outside world with its huge phase space. So, the two particle effects can be either beneficial by bringing carriers where we want to see them but also detrimental in that they may lead to a loss of carriers bound to the dots. Another detrimental effect, important in view of the quantum control of the QD state, imperatively needed to any kind of quantum computation, arises if a coupling is established between the QD bound states and their environment (see e. g. [54-55]). The environment is essentially decoherent: its density matrix is diagonal with Boltzmann – like diagonal terms and any off diagonal term decays in an

arbitrarily short amount of time. There is therefore a risk of polluting the quantum control of the QD if two particle effects come into play and connect the QD bound state to the continuum of unbound QD states. Let us recall that, as mentioned earlier, there are both a 2D continuum associated with the wetting layer states and a 3D one associated with the surrounding matrix.

The carriers interact because of Coulomb interaction. The capture or ejection of particles due to Coulomb scattering between them is usually termed Auger effect.

Two particle effects involve either different particles, like electrons and holes, or two identical particles, e.g. 2 electrons. In the latter situation, the wavefunction should be antisymmetrized to comply with the Pauli principle.

IV-1) Electron-hole Coulomb scattering

The electron capture to a QD by scattering on delocalized holes has been investigated by Uskov et al [56] and Magnusdottir et al [57] assuming unscreened Coulomb scattering and conical, spherical or pancake – like QD shapes. These authors found a quadratic dependence of the scattering rate upon the hole carrier concentration: if R is the rate of carriers making a transition from the wetting layer to the QD bound state, the numerical results can be described by:

$$R = C_{eh} p_h^2 \quad (12)$$

where p_h denotes the hole concentration and C_{eh} is a constant. In contrast to the single carrier capture due to LO phonon emission (see above), the Coulomb scattering is always allowed. It is the more efficient when the momentum change for the carrier that remains delocalized (here the hole) is the smaller. If one assumes a Boltzmann distribution of the continuum states, then the Auger

capture of an electron to a QD will be the more efficient when there is an electronic level close from the onset of the continuum. Values of C_{eh} reach $10^{-23} \text{ m}^4 \text{ s}^{-1}$. They are typically 2 orders of magnitude smaller than the Auger rate of electron capture by electron-electron scattering. This can be understood as follows: the holes have a larger mass than the electrons. Therefore, for a given excess energy, the scattered hole will undergo a larger change of wavevector than would a scattered electron. This implies that the Coulomb matrix elements that show up in the Fermi Golden Rule will be smaller for holes, in particular the form factors (for details see [24]). The same reasoning leads to the conclusion that, for given QD parameters, the capture on a P_e level should be more efficient than on S_e level.

It is also possible that the Auger scattering by delocalized holes leads to a relaxation of electrons that are already bound to the QD's in excited states. This relaxation mechanism was first studied by Bockelmann and Egeler [58]. Like the electron capture by Auger effect, its efficiency increases linearly with the hole concentration. It was found that a fast relaxation (say a transition rate for relaxation in excess of 10^{11} s^{-1}) was possible at relatively large hole concentration (say $p_h > 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) and also that the numerical results are little affected by using unscreened or dynamically screened coulombic potentials.

It has been suggested by Efros et al [59] that electron-hole scattering between bound states could lead to an electron relaxation accompanied by a simultaneous "heating" of the hole. Strictly speaking this relaxation does not take place: if the electron-hole pair possesses only discrete energy levels, then either it has been placed initially in one of these states and then nothing happens, or it has been prepared in a linear superposition of these states and then, the pair will visit all its (finite number of) available states. In particular, as time flows, it will come close in energy (or even coincides with) the initial states (quantum resurgence). The electron relaxation cannot be irreversible because there is no

continuum to create this irreversibility. However, it may well happen that in practice the excited hole levels (because of the hole heavy effective mass or the particular shape of the dot) are so dense that they actually mimic a continuum. This question clearly requires further studies, taking in particular into account the fact that irreversible acoustical phonon emission becomes efficient between closely spaced discrete levels [60].

Irreversible Auger relaxation accompanied by the ejection of the hole is possible if the initial energy of the electron – hole pair exceeds the energy of the pair where the electron has a lower energy and the hole is in the continuum (either 2D or 3D). This phenomenon was discussed by Ferreira et al [26] and shown to be very efficient when it is energetically allowed. It is therefore beneficial for the relaxation. We shall now see that it is intimately linked to debated experimental findings.

It has been shown by Toda et al [61], and since observed by many groups [62-65], that continuums of optical absorption existed in InAs QD's at much lower energy than expected for the onset of the wetting layer – wetting layer transitions (labeled w_e-w_h in the following) but at larger energy than the ground recombination line (S_e-S_h). In the following, we assume cylindrical symmetry for QD's and label electron – hole states by indexing the one particle states by e or h. Fig.(13) from Oulton et al [64] shows a single dot photoluminescence excitation spectrum versus the excess electron-hole energy compared to S_e-S_h . It is seen that for excess energies > 50 meV, there exists peaks that are superimposed to an increasing background. It is noteworthy that the width of these peaks increases with increasing excess energy.

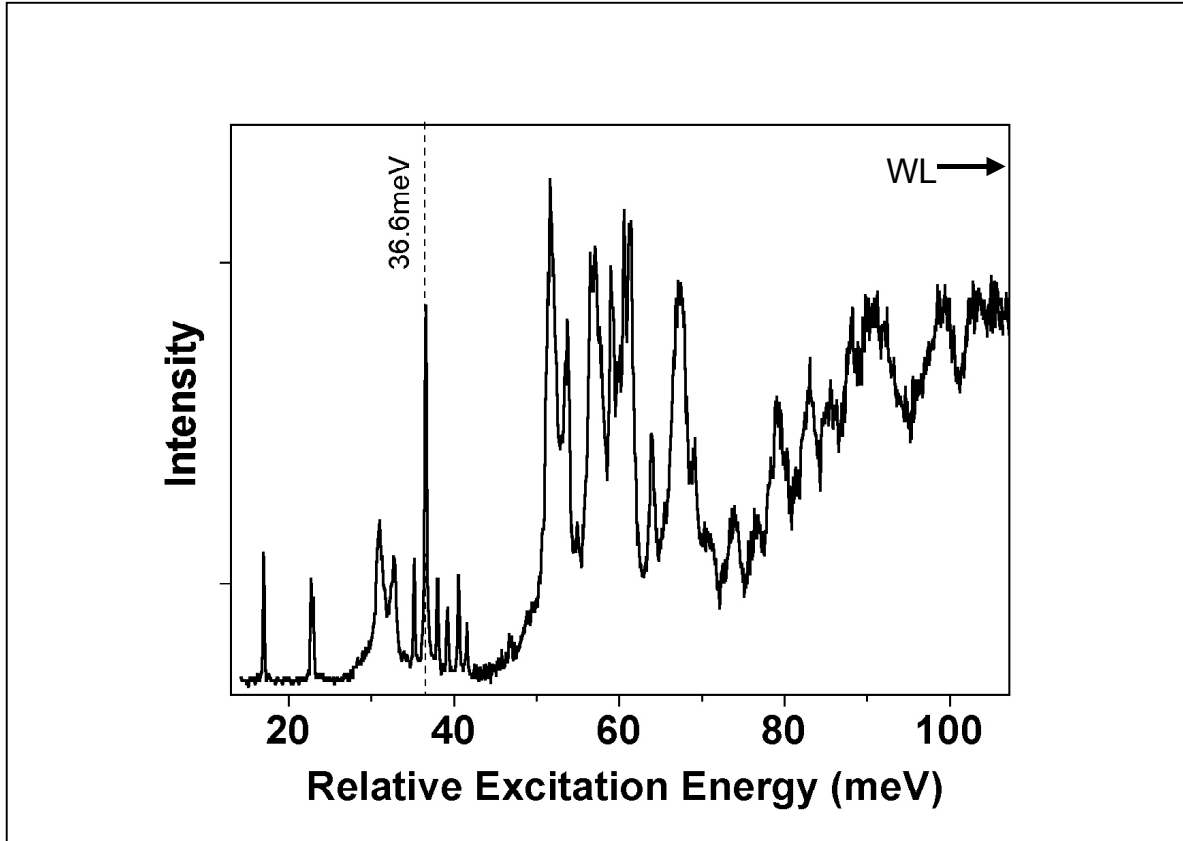


Fig.(13) Photoluminescence excitation spectrum of a single InAs/GaAs QD versus the energy of the incident light measured from the photoluminescence line.

Courtesy Dr. R. Oulton.

Complementary information were obtained from the study of the temperature dependence of the peak widths in different single InAs QD's by Kammerer et al [63] (see fig.(14)). Compared to Oulton et al [64], these dots support less bound states, in other words P_e-P_h is closer from w_e-w_h , the onset of the 2D continuum (≈ 66 meV compared to ≈ 195 meV). It was found that the peak widths increase continuously with T and, like in Oulton et al's experiments, that the excited peak (attributed to P_e-P_h) displays larger widths than the ground one (S_e-S_h). More striking is the faster temperature increase for P_e-P_h compared to S_e-S_h . Actually, it appears that P_e-P_h has a width that increases linearly with T, a feature that recalls what is usually observed in bulk

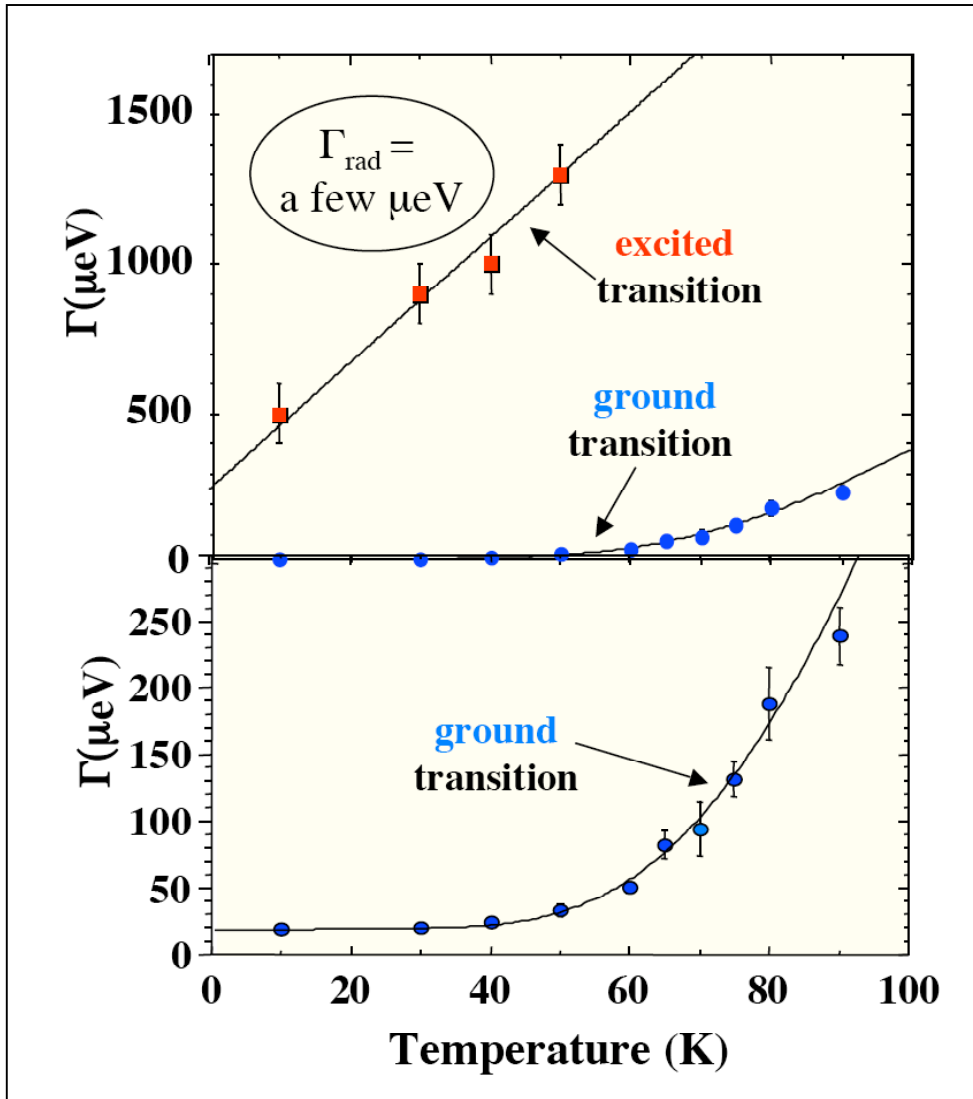


Fig.(14) Full width at half maximum of the ground transition and of an excited transition in a single InAs QD versus temperature. Adapted from [61].

materials or QW structures. In addition, the order of magnitude of the slope of this linear increase is comparable to the findings in QW structures. In the latter, the linear increase in the line broadening is simply due to the number of acoustical phonons $n(T)$ that are irreversibly emitted by the QW or bulk excitons: at high temperature $n(T)$ becomes proportional to T . This phonon emission is accompanied by an energy relaxation of the exciton, through its

translational kinetic energy, till a (very small) wavevector where the emission of acoustical phonons becomes impossible. The fact that the same feature shows up in QD's, believed to display only discrete states, was puzzling. In QD's, there is a priori no e-h continuum that surrounds the discrete S_e - S_h or P_e - P_h discrete lines. Hence, the only possible acoustical phonon emission would be due to either the electron or the hole of the pair relaxing towards a lower state. This relaxation is however known to be very inefficient (phonon bottleneck) as soon as the energy difference between the two levels exceeds a few meV's [60,66]. The puzzle was resolved by Vasanelli et al [67] who pointed out that, if P_e - P_h has a larger energy than the mixed (or crossed) continuum generated by letting the electron to occupy a lower state (e.g. S_e) in lieu of P_e while the hole would be kicked out from the QD, then it will auto-ionize due to Coulomb interaction. Symmetrically, the hole could relax while the electron would be ejected from the QD. With the usual InAs/GaAs QD's, it is the former mixed continuum that has the lower energy.

Let us briefly see how the discrete state P_e - P_h acquires a finite lifetime because it is Coulomb - coupled to one (or several) continuum(s) (for details see [22]). To simplify the matter as much as possible, we retain only P_e - P_h as the only discrete state of the problem. Further, we take only one mixed continuum into account. Since the diagonal Coulomb matrix elements are quite large, we write:

$$H = H_e + H_h + \delta |P_e P_h\rangle \langle P_e P_h| + (V_{eh} - \delta |P_e P_h\rangle \langle P_e P_h|) \quad (13)$$

where $\delta = \langle P_e P_h | V_{eh} | P_e P_h \rangle$ and V_{eh} is the electron-hole Coulomb coupling. The discrete state is at the same energy as the S_e - w_h continuum. Then, its lifetime is given by the expression:

$$\frac{\hbar}{2\pi\tau_{P_e-P_h}} = \sum_{v_h} \left| \langle P_e P_h | V_{eh} | S_e v_h \rangle \right|^2 \delta(\epsilon_{P_e P_h} - \epsilon_{S_e v_h}) \quad (14)$$

In the previous equation, the matrix elements are difficult to evaluate because they involve the exact continuum states of the hole $|\nu_h\rangle$. If one approximates these states by the plane waves $|\vec{k}_h\rangle$, the evaluation of the matrix elements becomes simple and for typical dots with $m_e = 0.07m_0$, $m_h = 0.38 m_0$ and using the variational solutions [21,22] for the P_e , S_e , P_h states, we get a lifetime in the range of 1-100 ps for the P_e - P_h transition, depending on the QD radius. Note that this is considerably shorter than the radiative lifetime (≈ 1 ns). The auto-ionization lifetime does not vary much with increasing P_e - P_h energy because the continuum to which P_e - P_h is superimposed is 2D. However, like in the Auger capture, the trend for τ is towards an increase (i.e. a decreasing linewidth of the P_e - P_h line) with increasing detuning of the P_e - P_h transition from the onset of the continuum: the ejected electron has an increasing kinetic energy and therefore its Coulomb matrix elements are smaller. The decreasing trend would be more pronounced if it were the hole that was ejected from the dot.

Within the auto-ionization formalism one readily understands the experimental observations [63,64] that the width of the discrete peaks superimposed to the increasingly larger continuum was increasing. It is simply that further and further crossed transitions channels open when the e-h pair energy increases.

The net result of the Coulomb coupling is that the e-h pair spectrum becomes continuous around the discrete state. Hence, it becomes possible to envision that the now virtual bound P_e - P_h state becomes coupled to other states of the continuum by the emission of acoustical phonon of low energy (1 meV or so). The coupling to the phonons is the sum of the electron coupling and of the hole coupling. The emission or absorption of a phonon is therefore due to one particle, the other being a spectator. Because there is no common state to P_e - P_h , and $S_e - \nu_h$, we see that there is no direct phonon coupling between the discrete

state $P_e P_h$ and the continuum. To get a non zero term (see fig.(15)), one should Coulomb admix $P_e P_h$ with $X_e - v_h$ or $S_e - X_h$, where X_e, X_h are two arbitrary electron or hole states. The larger admixture is provided by $S_e - S_h$. Hence:

$$|\psi\rangle \approx |P_e P_h\rangle + \frac{1}{\Delta} |S_e S_h\rangle \quad ; \quad (15)$$

$$\Delta = \varepsilon_{P_e} - \varepsilon_{S_e} + \varepsilon_{P_h} - \varepsilon_{S_h} + \langle P_e P_h | V_{eh} | P_e P_h \rangle - \langle S_e S_h | V_{eh} | S_e S_h \rangle$$

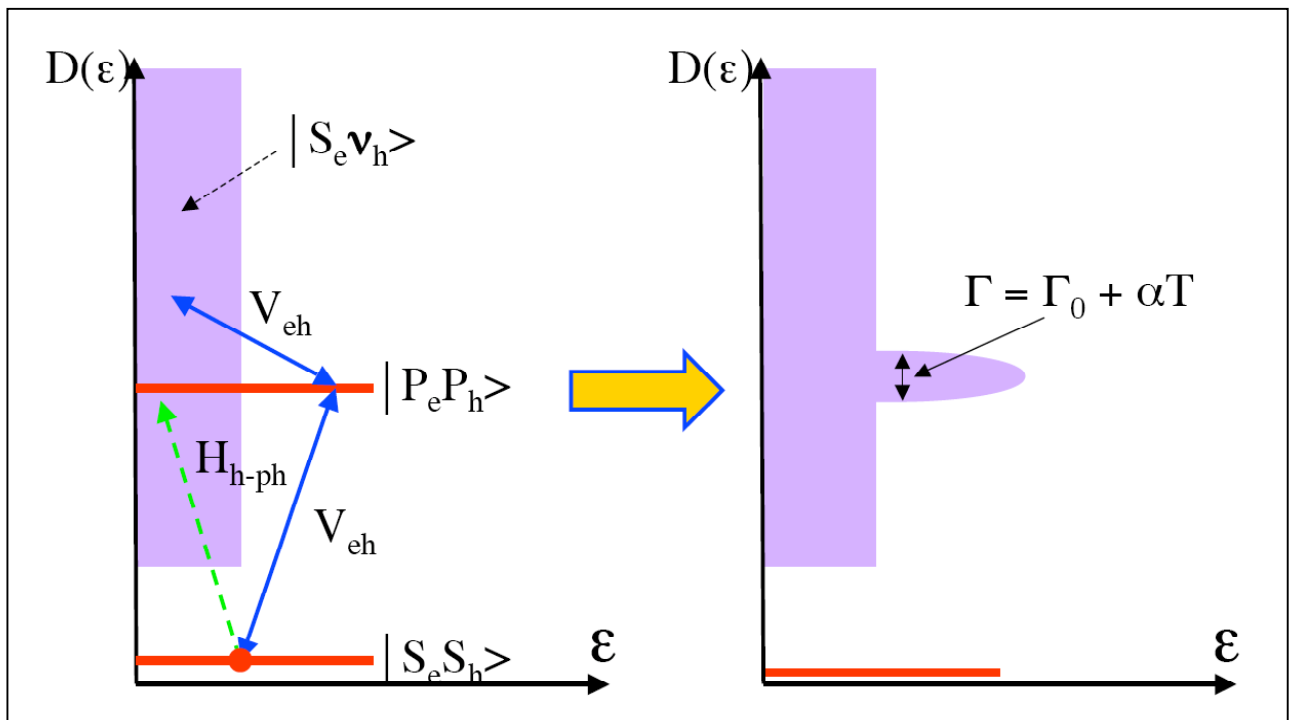


Fig.(15) Sketch of the perturbation schemes that contribute to the Auger or phonon broadening of an excited transition (here $P_e - P_h$) superimposed to a crossed continuum (here $S_e - v_h$).

The lifetime limited by the acoustical phonon emission is therefore given by:

$$\frac{\hbar}{2\pi\tau_{em}} \approx \sum_{v_h} \sum_{\vec{Q}} |\alpha_{ac}(\vec{Q})|^2 \frac{|\langle S_h | e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}_h} | v_h \rangle|^2}{\Delta^2} (1 + n_{\vec{Q}}) \delta[F(v_h, \vec{Q})] \quad (16)$$

$$F(v_h, \vec{Q}) = \varepsilon_{P_e} + \varepsilon_{P_h} + \langle P_e P_h | V_{eh} | P_e P_h \rangle - (V_{bh} + \varepsilon_{v_h} + \varepsilon_{S_e} + \hbar c_s Q)$$

where \mathbf{Q} is the 3d phonon wavevector and bulk isotropic phonons have been considered. $n_{\mathbf{Q}}$ is the Bose -Einstein occupation number and c_s the sound velocity. α_{ac} is the hole – acoustical phonon interaction and V_{bh} is the height of the QD potential for holes and ε_{v_h} is the kinetic energy of the ejected hole. A similar expression holds for phonon absorption except that $1 + n_{\mathbf{Q}}$ should be replaced by $n_{\mathbf{Q}}$. The linear increase of the broadening with T follows immediately since at large T the number of acoustical phonons $n_{\mathbf{Q}} \approx k_B T / \hbar \omega_{\mathbf{Q}} \gg 1$. Likewise the Auger broadening, we expect the phonon broadening to increase with increasing energy of the auto – ionizing state. This is because of the multiplication of the crossed continuums and hence of the larger density of final states for the phonon emission. One finds that the slope of the P_e - P_h linewidth versus T is a few tens of $\mu\text{eV/K}$ for typical QD's.

In summary, the existence of mixed continuum allows us to write that:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_c} + \gamma T \quad (17)$$

where τ_c is the lifetime limited by Coulomb effects with the further information that both $1/\tau_c$ and γ increase if one investigates states that are more excited than P_e - P_h .

At elevated temperature optical phonon scattering would come into play. In contrast with acoustical phonons, the coupling with LO phonons does not follow the Fermi Golden Rule but rather gives rise to mixed elementary excitations: the polarons [68,69]. The previous weak coupling description is

inappropriate to handle the auto-ionization of the P_e - P_h polaron. Work remains to be done in this area.

Note that it is nowadays experimentally well established that acoustical phonons dress the Coulomb correlated e-h pairs (as witnessed by the pedestal that supports the sharp zero phonon line [70], observed in the interband spectroscopy of single QDs). Thus, one may wonder if the non perturbative couplings [71] that lead to these pedestals should not be taken into account in the calculation of the phonon – assisted lifetime of P_e - P_h or more excited transitions. Actually, we do not believe this is the case because the physical mechanism at stake, the acoustical phonon emission by a bound electron-hole pair to become a mixed continuum state, is genuinely outside the scope of the formalism that leads to the pedestal. The latter is based on the restriction of the electron-hole pair Hilbert space to a single level.

The irreversible emission of acoustical phonons and the Auger disintegration of the excited e-h pairs share irreversibility in common. The size of the continuum to which the initial discrete state is coupled is so big that the probability that the system returns to its initial quantum state decays exponentially to zero with a short time constant (a few ps). This irreversible decay affects not only the populations of the P_e - P_h levels but also the coherences of the P_e - P_h interband transition. At the largest, the lifetime of the coherence of this excited transition is twice the population lifetime. Therefore, any entanglement one can imagine which would involve the excited pair state is prone to a ps decay if the discrete pair state has a larger energy than the first mixed continuum.

IV-2) Coulomb scattering between identical particles

As mentioned above, the main difference between the Coulomb scattering of identical particles compared to that of unlike particles is the requirement of anti-symmetrization. Bockelmann and Egeler [58] studied the relaxation of an already bound electron to a QD by Auger effect with a plasma of delocalized electrons. They found this Auger relaxation to become efficient (transition rate in excess of 10^{11} s^{-1}) only for large plasma concentration (10^{11} cm^{-2}). A similar calculation was undertaken by Wetzler et al [72] who studied the case of Auger processes between the electrons bound to a QD and 2D (electrons in a wetting layer, a nearby QW) or 3D (contacts) delocalized carriers located a distance d from the QD plane. For a 2D density of 10^{11} cm^{-2} mobile carriers located at $d = 0 \text{ nm}$ from the QD plane, Wetzler et al found a 10^{12} s^{-1} transition rate for a 30 meV energy variation of the bound carrier. The rate increases linearly with the carrier concentration. If however the 2D gas is at $d = 40 \text{ nm}$ away from the QD plane, the Auger rate drops to 10^8 s^{-1} at $T = 77\text{K}$ and a 2D carrier concentration of 10^{11} cm^{-2} .

Uskov et al [54], Magnusdottir et al [57] studied the Auger capture from a 2D electron plasma (or a hole plasma). They found a capture rate that grows quadratically with the carrier concentration (fig.(16)). Again only carrier concentration in excess of 10^{11} cm^{-2} leads to significant rates. Also, the capture is the more efficient to the shallower bound state because of a smaller wavevector transfer to the scattered particle. Auger scattering and capture were also studied theoretically by Nielsen et al [73], Nilsson et al [74] and by Chaney et al [75].

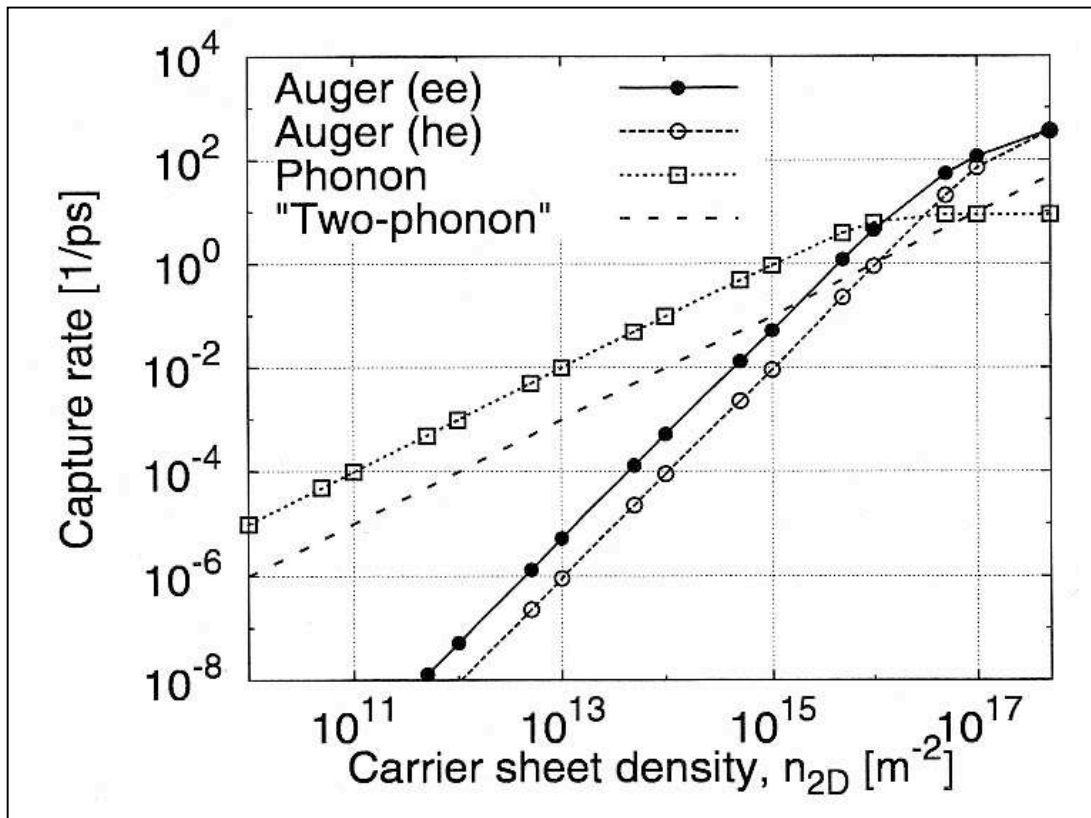


Fig.(16) The carrier capture rate of electrons into a QD (1P state) is plotted versus the carrier sheet density in the wetting layer for LO phonon – assisted and Auger captures. The QD is a truncated cone with $R = 5.4$ nm, $h = 3$ nm and a basis angle of 30° .

Courtesy Dr. I. Magnusdottir [23].

Because of its technological importance for lasers, the Auger rates in QD were measured by several groups [76-82]; for a general discussion see [83]). Marko et al [84] recently demonstrated that the Auger recombination remains an important factor in $1.3\mu\text{m}$ InAs QD lasers while it plays a less important role in QD lasers that emit at 980 nm. In the $1.3\mu\text{m}$ case the threshold current increases with temperature while it remains constant in the 980 nm case, as indeed expected from lasing action between discrete levels.

When 2 electrons are bound to a QD, in a P_e shell for instance, very short relaxation times (ps) for one electron to S_e were calculated by Ferreira et al [26]. This intra dot Auger relaxation occurs only if the initial energy is greater than the onset of the crossed continuum S_e-w_e . Its efficiency can be qualitatively understood by noting that it corresponds to a charge of $-2e$ squeezed in a nanometric volume (a truncated cone with $R = 10$ nm, $h = 2-3$ nm and a basis angle of 30°) and therefore to a large electron 3D concentration.

A series of single dot photoluminescence experiments have been undertaken by Warburton et al on InAs QD's with a controllable number of electrons [85] and Urbaszek et al [86]. This control was achieved by placing the QD plane in the intrinsic part of a MIS structure [87]. The ground luminescence line (S_e-S_h) was then observed when the QD is loaded by 0, 1, 2, 3, ... electrons. Let us first consider the radiative recombination of the doubly charged exciton X^{2-} . It comprises 3 electrons and 1 hole. The ground configuration of this complex has the hole in the S_h state. The S_e shell is filled with two electrons. There is one electron in the P_e shell. After optical recombination, no hole is left, 1 electron is in S_e while the other is in the P_e state. There are two possible two electron states corresponding to a total spin $\Sigma = 0$ or $\Sigma = 1$. The $\Sigma = 0$ state lays at higher energy than the triplet state. The interband transition occurs at lower energy and is considerably broader when the final state is the singlet : broadenings of 0.5 meV and < 0.05 meV for final $\Sigma = 0$ and $\Sigma = 1$ states, respectively. Both of these linewidths grow quickly and almost linearly with temperature. These features are reminiscent of the Auger broadening discussed above for the auto-ionization of the P_e-P_h two particle states. However, the intra dot Auger mechanism applies to the X^{2-} case only if both the $\Sigma = 0$ and $\Sigma = 1$ ($S_e - P_e$) energies are above the S_e-w_e edges, i. e.

$$\varepsilon_{P_e} + C_{S_e P_e} \pm E_{X_{S_e P_e}} > V_e - \varepsilon_{wl} \quad (18)$$

where $C_{S_e P_e}$ and $Ex_{S_e P_e}$ stand for the direct and exchange Coulomb integrals respectively between S_e and P_e electrons, the plus (minus) sign is for the $\Sigma = 0$ ($\Sigma = 1$) state. V_e is the conduction band offset and ϵ_{wl} is the energy distance between the bound state for the z motion in the wetting layer and the GaAs continuum. The Coulomb effects between the S_e electron and the electron in the wetting layer has been neglected. The condition given by eq.(18) is difficult to fulfill in the general case. It was argued [86] that the broadening of the X^{2-} lines and particularly of the $\Sigma = 0$ one was due to the overlap between these discrete states and the band tail of the S_e - w_e edge due to the shallow binding of the $S_e - P_e$ configuration. Within this scheme, the very different linewidths of the triplet and singlet state would arise from the different matrix elements between the singlet or triplet states and the bandtail.

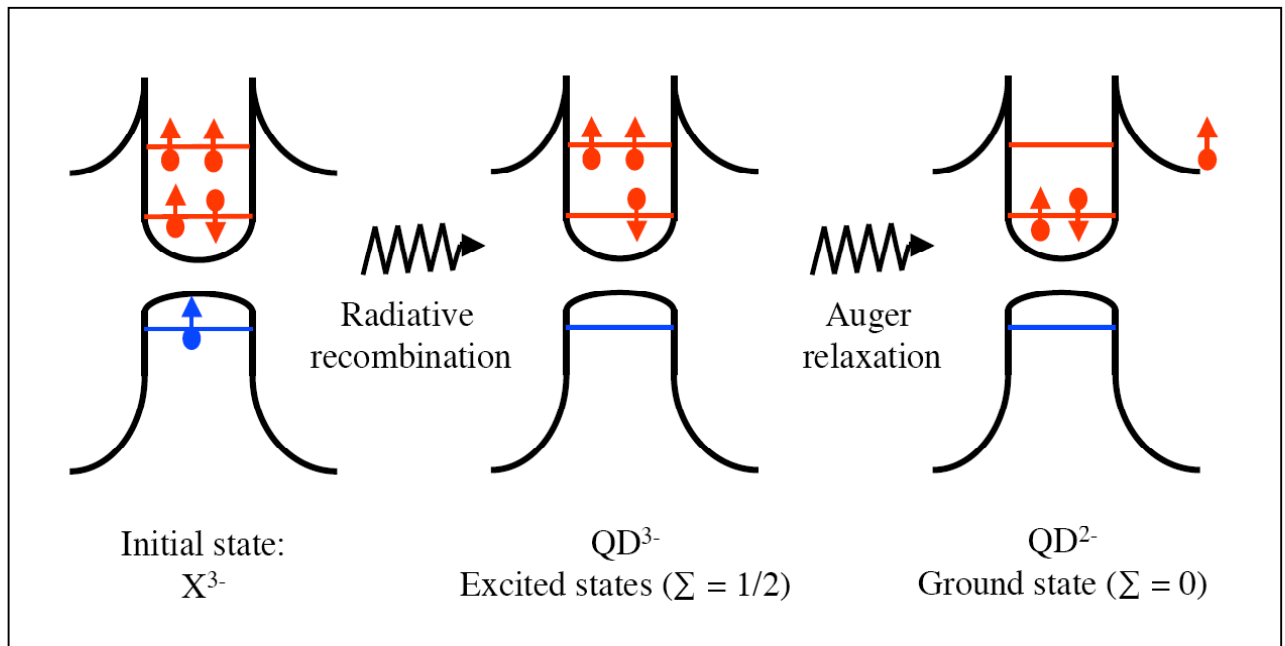


Fig.(17) Sketch of the different charge configurations involved in the radiative recombination of the X^{3-} exciton in a QD.

Another interesting situation arises when there are 3 electrons residing in the dot at equilibrium. By adding one electron – hole pair, one finds 1 hole in

S_h state. The S_e shell is filled by 2 electrons. The P_e shell contains 2 electrons. Assume the total electron spin Σ is one. This $\Sigma = 1$ is the initial, discrete, state of the optical recombination (fig.(17)). The final state of the recombination consists in a dot with no hole, 1 electron in the S_e shell and 2 electrons in the P_e shell. These 3 electrons can have a total spin of either $\Sigma = 3/2$ or $\Sigma = 1/2$. In Warburton et al' and Urbaszek et al' experiments, this excited configuration of the QD charged by 3 electrons was probably degenerate with the continuum of states corresponding to a dot loaded by 2 electrons both in the S_e shell, the third electron having been ejected in the wetting layer continuum (a $\Sigma = 1/2$ state). Hence, the $\Sigma = 1/2$ recombination line, instead of being discrete (or rather displaying a μeV width due to the radiative broadening), displays a finite width controlled by the Auger effect. This width is of the order of $\approx 1 \text{ meV}$, in agreement with theoretical estimates [22,26,88]. The $\Sigma = 3/2$ line is much less broad than the $\Sigma = 1/2$ line because in addition to the Coulomb scattering, an extra spin flip is needed to allow a $\Sigma = 3/2$ state to disintegrate into a $\Sigma = 1/2$ continuum.

Furthermore, the PL experiments on charged single dots were undertaken in the presence of a strong magnetic field applied parallel to the growth axis. This strong field Landau quantizes the in – plane motion of the ejected electron. If the Landau quantization is larger than the homogeneous broadening, then the irreversible auto – ionization of the excited configuration (due to Auger effect) becomes suppressed. There are now discrete (but degenerate) wetting layer states. Only a small number of them are Coulomb - coupled to the discrete states, on account of the conservation of the total angular momentum. Any time the magnetic field lines up the energy of the discrete states with one of these wetting layer Landau levels, an anti – crossing takes place and one observes several recombination lines instead of a single one.

Finally, by biasing the structure even further, the wetting layer (assumed empty in the previous discussion) starts to fill. The X^{3-} exciton, $\Sigma = 1/2$ becomes degenerate with a Fermi sea and complicated many body effects may show up. In one of them, the QD spin becomes screened by Fermi sea at low temperature. The total spin of the Fermi sea plus the QD is zero (Kondo exciton [89,90]). This is a non perturbative effect of the Coulomb interaction (in contrast to the Auger decay previously discussed). Smith et al [91] obtained evidences of spin flip scatterings between the electron bound to a QD and the adjacent Fermi sea in the back contact of a biased QD by observing the change of dark QD bound excitons into bright excitons.

Conclusions

The semiconductor heterostructures of low dimensionality are characterized by a very small number of available quantum states at low energies. This is certainly beneficial if one attempts a quantum control of physical properties that depend sensitively on these sparse states. On the other hand, this makes their direct excitation extremely difficult to achieve. One is then forced to supply these nanometric objects with carriers through their macroscopic surrounding. Certain states of the continuum are better suited than others to play this part; these are the virtual bound states (of a QW, a QD). There are evidences that the virtual bound states control the feeding of the low laying states in a QW. The photoconductive properties of QD's have already evidenced the part played by the virtual bound states.

The two particle states are a very rich area to investigate. Any kind of interband optical properties involve electron – hole pairs. Their spectrum can display mixed continuums where one of the particles is bound to the dot while the other travels freely in the wetting layer. These mixed continuums can

overlap discrete excited pair states, transforming them into virtual bound states of the pair Hamiltonian. The detrimental action of these mixed continuums on the linewidth of QD excited transitions has been experimentally demonstrated but should receive more attention.

Finally, the electrical control of the loading of a single dot has allowed for the observation of the Auger relaxation of excited configurations of charged QD's when the wetting layer was empty. The coherent mixing of discrete QD bound states with an occupied wetting layer remains, so far, a tantalizing concept.

Acknowledgements

The LPA-ENS is “Laboratoire associé au CNRS et aux Universités Pierre et Marie Curie et Denis Diderot”. One of us (GB) would like to thank Prs. H. Sakaki, Y. Arakawa and K. Hirakawa for their hospitality at the IIS-Tokyo where part of this review was written and for enlightening discussions. A number of colleagues have helped us to investigate more thoroughly the QD continuum. We acknowledge Prs. Y. Guldner, G. Strasser and K. Unterrainer, Drs G. Cassabois, S. Hameau, N. Regnault, Ph. Roussignol and L.A. de Vaultier for numerous insights on InAs QD's. We are much indebted to Drs I. Favero, C. Kammerer, Ph. Lelong, A. Vasanelli, I. Magnusdottir, O. Verzellen, N. D. Phuong, R. Oulton and F. F. Schrey for their active participation to the work reported here.

References

- 1) D. Bimberg, M. Grundmann and N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. (John Wiley and Sons, New York, 1999).
- 2) O. Stier, M. Grundmann and D. Bimberg. Phys. Rev. **B59**, 5688 (1999). See also: O. Stier. *Electronic and optical properties of quantum dots and wires*, (Berlin Studies in Solid State Physics, Verlag Wissenschaft und Technik, Berlin 2001) and references cited therein.
- 3) A. J. Williamson and A. Zunger. Phys. Rev. **B59**, 15819 (1999); **B61**, 1978 (2000).
- 4) A. Zunger. Phys. Stat. Solidi **A190**, 467 (2002) and references cited therein.
- 5) S. Lee, L. Jönsson, J.W. Wilkins, G. W. Bryant and G. Klimeck. Phys. Rev. **B63**, 195318 (2001).
- 6) C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Laloe. *Quantum Mechanics* (John Wiley and Sons, New York, 1977).
- 7) L. I. Schiff. *Quantum Mechanics*, (Mc Graw - Hill, Singapore, 1968).
- 8) D. Bohm. *Quantum Theory*, (Prentice – Hall, Englewood Cliffs, N. J. (USA), 1951).
- 9) See e. g. C. Beenacker and van Houten. *Solid State Physics* **44**, 1 (1991) and references cited therein.
- 10) J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics* (John Wiley and Sons, New York, 1975).
- 11) J. A. Brum and G. Bastard. Phys. Rev **B33**, 1420 (1986).
- 12) G. Bastard. Phys. Rev. **B30**, 3547 (1984).
- 13) *Hot carriers in semiconductor nanostructures : Physics and applications*, (edited by J. Shah, Academic Press, London, 1992).
- 14) P. Y. Yu and M. Cardona, (*Fundamentals of Semiconductors: Physics and materials properties*, Springer-Verlag, Berlin, Second Edition, 1999).

- 15) B. K. Ridley. *Quantum Processes in Semiconductors* (Clarendon Press Oxford, 1988).
- 16) M. Babiker and B. K. Ridley. *Superlatt. Microstruct.* **2**, 287 (1986).
- 17) D. Morris, B. Deveaud, A. Regreny and P. Auvray. *Phys. Rev.* **B47**, 6819 (1993).
- 18) P. Sotirelis and K. Hess. *Phys. Rev.* **B49**, 7543 (1994).
- 19) M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, R. Madeiros-Ribeiro and P. M. Petroff. *Europhys. Lett.* **36**, 197 (1996).
- 20) Ph. Lelong and G. Bastard. *Solid State Commun.* **98**, 819 (1996).
- 21) Details can be found in D. P. Phuong. PhD thesis Paris 6 University (2005).
- 22) A. Vasanelli. PhD thesis. Paris 6 University (2002).
- 23) R. Buczko and F. Bassani. *Phys. Rev.* **B54**, 2667 (1996).
- 24) I. Magnusdottir. *Modeling of phonon- and Coulomb-mediated capture processes in quantum dots*, (COM Technical University of Denmark. Lingby. Denmark 2003).
- 25) I. Magnusdottir, A. V. Uskov, S. Bischoff, B. Tromborg and J. Mork. *J. Appl. Phys.* **92**, 5982 (2002).
- 26) R. Ferreira and G. Bastard. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2818 (1999).
- 27) K. Gündogdu, K. C. Hall, T. F. Boggess, G. D. Deppe and O. B. Shchekin. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4570 (2004).
- 28) S. Trumm, W. Besseli, H. J. Krenner, D. Schuh, M. Bichler, J. J. Finley and M. Betz. *Appl. Phys. Lett.* **87**, 153113 (2005).
- 29) O. Verzelen, S. Hameau, Y. Guldner, J. M. Gérard, R. Ferreira and G. Bastard. *Jpn J. Appl. Phys.* **40**, 1941 (2001).
- 30) S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaitre and J. M. Gérard. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152 (1999).
- 31) I. Magnusdottir, A. V. Uskov, R. Ferreira, G. Bastard, J. Mork and B. Tromborg. *Appl. Phys. Lett.* **18**, 4318 (2002).
- 32) M. Glanemann, V. M. Axt and T. Kuhn. *Phys. Rev.* **B72**, 045354 (2005).

- 33) L. Chu, A. Zrenner, G. Böhm and G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.***75**, 3599 (1999).
- 34) N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Nakata, N. Yokoyama, T. Mankad and P. M. Petroff. *Jpn. J. Appl. Phys. Part I* **38**, 2559 (1999).
- 35) H. C. Liu, M. Gao, J. McCaffrey, Z. R. Wasilewski and S. Faffard. *Appl. Phys. Lett.***78**, 79 (2001).
- 36) S. F. Tang, S. Y. Lin and S. C. Lee. *Appl. Phys. Lett.***78**, 2428 (2001).
- 37) L. Rebohle, F. Schrey, S. Hofer, G. Strasser and K. Unterrainer. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2079 (2002).
- 38) S. Maimon, E. Finkman, G. Bahir, S. E. Schacham, J. M. Garcia and P. M. Petroff. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2003 (1998).
- 39) S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, V. Immer, E. Finkman and J. M. Gérard. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2327 (2001).
- 40) Z. Ye, J. C. Campbell, Z. Chen, E. T. Kim and A. Madhukar. *J. Appl. Phys.* **92**, 7462 (2002).
- 41) L. Chu, M. Arzberger, G. Böhm and G. Abstreiter. *J. Appl. Phys.* **85**, 2355 (1999).
- 42) J. S. Kim, P. W. Yu, J. Y. Leem, M. Jeon, S. K. Noh, J. I. Lee, G. H. Kim, S. K. Kang, J. S. Kim and S. G. Kim. *J. Appl. Phys.* **91**, 5055 (2002).
- 43) K. W. Berryman, S. A. Lyon and M. Segev. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1861 (1997).
- 44) M. V. Maximov, A. F. Tsatsul'nikov, B. V. Volovik, D. A. Bedarev, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, N. A. Bert, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, I. P. Soshnikov and P. Werner. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2347 (1999).
- 45) J. Phillips, K. Kamath and P. Bhattacharya. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2020 (1998).
- 46) B. Aslan, H. C. Liu, M. Korkusinski, S. J. Cheng and P. Hawrylak. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 630 (2003).

- 47) E. Finkman, S. Maimon, V. Immer, G. Bahir, S. E. Schacham, F. Fossard, F. H. Julien, J. Brault and M. Gendry. *Phys. Rev.* **B63**, 045323 (2001).
- 48) E. T. Kim, A. Madhukar, Z. Ye and J. C. Campbell. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3277 (1999).
- 49) S. W. Lee, K. Hirakawa and Y. Shimada. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1428 (1999).
- 50) Ph. Lelong, S. W. Lee, K. Hirakawa and H. Sakaki. *Physica* **E7**, 174 (2000).
- 51) B. F. Levine, *J. Appl. Phys.* **74**, R1 (1993).
- 52) F. F. Schrey, L. Rebohle, T. Müller, G. Strasser, K. Unterrainer, D. P. N'guyen, N. Regnault, R. Ferreira and G. Bastard. *Phys. Rev.* **B72**, 155310 (2005).
- 53) D. P. N'guyen, N. Regnault, R. Ferreira and G. Bastard. *Phys. Rev.* **B71**, 245329 (2005).
- 54) *The Physics of Quantum Information*, (D. Bouwmeester, A. Ekert, A. Zeilinger (Eds.). Springer Verlag, Berlin 2000).
- 55) *Semiconductor Macroatoms: Basic Physics and Quantum – device Applications* (edited by Fausto Rossi, Imperial College Press, London 2005).
- 56) A. V. Uskov, J. MCInerney, F. Adler and H. Schweizer. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 58 (1998).
- 57) I. Magnusdottir, A. V. Uskov, S. Bischoff and J. Mork. *Phys; Rev.* **B67**, 205326 (2003).
- 58) U. Bockelmann and T. Egeler. *Phys. Rev.* **B46**, 15574 (1992).
- 59) A. L. Efros, V. A. Kharchenko and M. Rosen. *Solid State Commun.* **93**, 281 (1995).
- 60) U. Bockelmann and G. Bastard. *Phys. Rev.* **B42**, 8947 (1990).
- 61) Y. Toda, O. Mariwaki, M. Nishioka and Y. Arakawa. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- 62) H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr., T. Takagahara and C. K. Shih. *Phys. Rev.* **B63**, 241303 (2001).

- 63) C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Lemaitre and J. M. Gérard. Phys. Rev. **B65**, 33313 (2001).
See also C. Kammerer. PhD thesis. Paris 6 University (2002).
- 64) R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakowski, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira and G. Bastard. Phys. Rev. **B68**, 235301 (2003).
- 65) E. W. Bogaart, J. E. M. Haverkort, T. Mano, T. van Lippen, R. Nötzel and J. H. Wolter. Phys. Rev. **B72**, 195301 (2005).
- 66) H. Benisty, C. M. Sottomayor – Torres and C. Weisbuch. Phys. Rev. **B44**, 10945 (1991).
- 67) A. Vasanelli, R. Ferreira and G. Bastard. Phys. Rev. Lett. **89**, 216804 (2002).
- 68) O. Verzelen, R. Ferreira and G: Bastard. Phys. Rev. Lett. **88**, 146803 (2002).
- 69) V. M. Fomin, V. N. Gladilin, J. T. Devreese, E. P. Pokatilov, S. N. Balaban and S. N. Klimin. Phys. Rev. **B57**, 2415 (1998).
- 70) L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal and H. Mariette. Phys. Rev. **B63**, 155307 (2001).
- 71) A. Vagov, V. M. Axt and T. Kuhn. Phys. Rev. **B66**, 165312 (2002).
- 72) R. Wetzler, A. Wacker and E. Schöll. Journ. of Appl. Phys. **95**, 7966 (2004).
- 73) T. R. Nielsen, P. Gartner and F. Jahnke. Phys. Rev. **B69**, 235314 (2004).
- 74) H. H. Nilsson, J. - Z. Zhang and I. Galbraith. Phys. Rev. **B72**, 205331 (2005).
- 75) D. Chaney, M. Roy and P. A. Maksym in *Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and Frontiers* edited by B. Joyce (Springer Verlag Berlin 2005).
- 76) F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, F. Scholz, H. Schweizer, M. H. Pilkhun, B. Ohnesorge and A. Forchel. J. of Appl. Phys. **80**, 4019 (1996).

- 77) B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel and Y. Arakawa. Phys. Rev. **B54**, 11532 (1996).
- 78) S. Grosse, J. H. H. Sandmann, G. von Plessen, J. Feldmann, H. Lipsanen, M. Sopenan, J. Tulkki and J. Ahopelto. Phys. Rev. **B55**, 4473 (1997).
- 79) S. Marcinkevicius and R. Leon. Phys. Rev. **B59**, 4630 (1999).
- 80) J. H. H. Sandmann, S. Grosse, G. von Plessen, J. Feldmann, G. Hayes, R. Phillips, H. Lipsanen, M. Sopenan and A. Aholpeto. Phys. Stat. Sol.**A164**, 421 (1997).
- 81) D. Morris, N. Perret and S. Faffard. Appl. Phys. Lett.**75**, 3593 (1999).
- 82) S. Raymond, K. Hinzer, S. Fafard and J. L. Merz. Phys. Rev. **B61**, 16331 (2000).
- 83) C. Delerue and M. Lannoo. *Nanostructures Theory and Modelling*. (Nanoscience and Technology. Springer – Verlag Berlin 2004).
- 84) I. P. Marko, A. D. Andreev, A. R. Adams, R. Krebs, J. P. Reithmaier and A. Forchel. Elect. Lett. **39**, No1 (2003).
- 85) R. J. Warburton, B. Urbaszek, E. J. McGhee, C. Schulhauser, A. Hogege, K. Karrai, A. O. Govorov, J.M. Garcia, B. D. Gerardot and P. M. Petroff. Nature (London) **427**, 135 (2004).
- 86) B. Urbaszek, E. J. McGhee, M. Krüger, R. J. Warburton, K. Karrai, T. Amand, B.D. Gerardot, P. M. Petroff and J. M. Garcia. Phys. Rev. **B69**, 035304 (2004).
- 87) M. C. Bödefeld, R. J. Warburton, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Madeiros-Ribeiro and P. M. Petroff. Appl. Phys. Lett. **74**, 1839 (1999).
- 88) A. Wojs and P. Hawrilack. Phys. Rev. **B55**, 13066 (1997).
- 89) A. O. Govorov, R. J. Warburton, and K. Karrai. Phys. Rev. **B67**, 241307 (2003).
- 90) R. W. Helmes, M. Sindel, L. Borda and J. Van Delft. Phys. Rev. **B72**, 125301 (2005).

91) J. M. Smith, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, A. O. Govorov, K. Karrai, B. D. Gerardot and P. M. Petroff. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 197402 (2005)