



HAL
open science

Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs sous pompage optique orienté

Benoit Eble

► **To cite this version:**

Benoit Eble. Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs sous pompage optique orienté. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : . tel-00197618

HAL Id: tel-00197618

<https://theses.hal.science/tel-00197618>

Submitted on 15 Dec 2007

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.

Université Pierre et Marie Curie - Paris VI
ED 397 Physique et Chimie des Matériaux

THESE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS VI

Discipline : Sciences des Matériaux

présentée par

Benoît EBLE

**Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques
d'InAs/GaAs sous pompage optique orienté**

Soutenue publiquement le 22 Novembre 2006 devant le jury composé de

<i>Examineur</i>	Yves GULDNER	Professeur - Université Paris VI
<i>Co-directeur de thèse</i>	Olivier KREBS	Chargé de recherche - CNRS
<i>Rapporteur</i>	Daniel PAGET	Directeur de recherche - Ecole Polytechnique
<i>Rapporteur</i>	Denis SCALBERT	Directeur de recherche - Université Montpellier II
<i>Examineur</i>	Christophe TESTELIN	Chargé de recherche - INSP
<i>Examineur</i>	Bernhard URBASZEK	Maître de conférence - INSA Toulouse
<i>Directeur de thèse</i>	Paul VOISIN	Directeur de recherche - CNRS

Laboratoire de Photonique et de Nanostructures - CNRS UPR 20 - Marcoussis

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au Laboratoire de Photonique et Nanostructures, dirigé par Jean-Yves Marzin, qui a réussi à construire au sein du site de Marcoussis, un environnement scientifique de tout premier plan.

Pour commencer, je souhaite remercier mon directeur de thèse, Paul Voisin, de m'avoir pris dans son équipe (Groupe d'Optique des nanoStructures Semiconductrices), au sein de laquelle j'ai éprouvé un immense plaisir à effectuer ce travail de recherche. Son enthousiasme et ses connaissances en physique des semiconducteurs ont été extrêmement précieux à mes yeux.

Je remercie mon "co-directeur" de thèse Olivier Krebs, qui m'a initié aux travaux de recherche en physique expérimentale. Sa passion pour la recherche, sa rigueur scientifique, sa disponibilité et sa bonne humeur ont rendu ces trois années scientifiquement motivantes et humainement agréables. *"Merci beaucoup de m'avoir communiqué ton goût pour la recherche."*

J'exprime ma reconnaissance à Daniel Paget et Denis Scalbert qui ont accepté de faire partie de mon jury de thèse et d'en être les rapporteurs. Je n'oublie pas Bernhard Urbaszek et Christophe Testelin qui ont examiné cette thèse, ainsi que Yves Guldner qui, en plus d'avoir présidé mon jury, a été mon examinateur aux épreuves orales de l'agrégation de physique, quelques années auparavant.

De façon générale, je tiens à saluer tous les membres du LPN pour leur sympathie et leur attention au cours de ces trois années. Je tiens à apporter une attention particulière à ceux que j'ai côtoyé d'avantage :

Pascale Sellenart, Jacqueline Bloch et Karine Menier, pour leurs discussions agréables. Je n'oublie pas aussi les extérieurs au groupe GOSS : Aristide Lemaître, Isabelle Robert et Isabelle Sagnes.

Évidemment je tiens à citer tous les thésards et post-docs que j'ai pu rencontrer et apprécier au cours des ces trois années : Sabine Laurent (qui m'a initié aux secrets de la micro-PL sur boîtes quantiques uniques), la "polish connexion" Arek Kudelski et Kasia Kowalik (avec lesquelles j'ai partagé la manip et bien plus encore...), Emmanuelle Peter, Julien Hours, Matthieu Perrin, Daniele Bajoni, Stéphane Laurent, Joseph Dufouleur et Damien Lucot (avec qui, après

avoir partagé les bancs du collège, j'ai partagé les joies et les peines de la micro-soudeuse).

Merci également à Fabien pour la préparation minutieuse des gâteaux de mon pot de thèse.

Enfin un grand merci à mes parents et à Sandra pour leurs réconforts et leurs encouragements sans relâche depuis des années.

Table des matières

Introduction	3
1 Les boîtes quantiques auto-assemblées	5
1.1 Croissance auto-organisée des boîtes quantiques InAs sur substrat GaAs	5
1.2 Structure électronique et orientation optique du spin : des matériaux massifs aux boîtes quantiques	7
1.2.1 Etude dans le massif	7
1.2.2 La couche de mouillage des boîtes quantiques : un puits quantique	15
1.2.3 Structure électronique d'une boîte quantique d'InAs/GaAs	18
1.3 Structure fine excitonique et conséquences	22
1.3.1 Structure fine de l'exciton neutre	23
1.3.2 Orientation optique des porteurs dans la boîte quantique	25
2 Dispositif pour contrôler la charge des boîtes quantiques	31
2.1 Diodes Schottky	32
2.1.1 Principes	32
2.1.2 Etapes technologiques	33
2.1.3 Caractéristiques électriques	36
2.1.4 Effet du champ électrique sur la luminescence	40
2.2 Effets de chargements sur boîtes quantiques uniques	43
2.2.1 Montage de micro-photoluminescence	43
2.2.2 Echantillon n-i-Schottky	44
2.2.3 Echantillon p-i-Schottky	49
2.3 Structures fines des excitons multichargés	50
2.3.1 Exciton doublement chargé X^{2-} et X^{2+}	50
2.3.2 Biexcitons chargés $2X^-$ et $2X^+$	52
2.4 Bilan	55
3 Orientation optique et relaxation de spin des trions	59
3.1 Orientation optique du spin d'un ensemble de boîtes	59
3.1.1 Choix de l'énergie d'excitation	61
3.1.2 Influence du champ électrique	62

3.1.3	Influence de la température	63
3.2	Orientation optique dans des boîtes quantiques uniques	64
3.2.1	Excitons neutres et doublement chargés	64
3.2.2	Trions négatifs	66
3.3	Dynamique de la polarisation circulaire photo-induite	71
3.3.1	Blocage de la relaxation de spin du trou dans les trions X^-	71
3.3.2	Relaxation du spin des électrons pour les trions X^+	74
3.4	Bilan	75
4	Interaction hyperfine dans les semiconducteurs	79
4.1	Introduction	79
4.2	Dynamique des spins nucléaires dans les semiconducteurs III-V	80
4.2.1	Interaction hyperfine avec les électrons	80
4.2.2	Couplage dipolaire entre noyaux	84
4.2.3	Approche thermodynamique de la polarisation des spins nucléaires	87
4.2.4	Une interaction duale	90
4.3	Mise en évidence de la polarisation nucléaire : des semiconducteurs massifs aux boîtes quantiques	92
4.3.1	Expériences révélant le champ Overhauser	92
4.3.2	Expériences types et résultats quantitatifs	93
5	Polarisation dynamique des spins nucléaires dans une boîte quantique où l'on contrôle l'état de charge	99
5.1	Mise en évidence du déplacement Overhauser	100
5.1.1	Déplacement Overhauser relevé sur les trions	103
5.1.2	Effets sur l'exciton neutre et le biexciton	105
5.1.3	Influence de la puissance d'excitation	108
5.1.4	Valeur de la polarisation nucléaire construite	108
5.2	Mise en équation de la polarisation dynamique des noyaux	109
5.2.1	Description du Hamiltonien dépendant du temps	109
5.2.2	Méthode de calcul	112
5.2.3	Détermination du temps de construction de la polarisation nucléaire	114
5.2.4	Discussion de la physique du mécanisme de polarisation des noyaux	116
5.3	Dépendance du déplacement Overhauser avec la tension de grille	121
5.4	Non-linéarités de la polarisation dynamique des spins nucléaires	125
5.4.1	Évolution du décalage Overhauser avec la polarisation électronique	125
5.4.2	Influence du sens du champ magnétique appliqué	127
5.4.3	Bistabilité de la polarisation nucléaire dans le régime des forts champs magnétiques	129
5.5	Bilan	133

6	Relaxation du spin électronique induite par l'interaction hyperfine	137
6.1	Mécanisme de Merkulov	138
6.1.1	Influence des fluctuations du champ Overhauser	138
6.1.2	Relaxation partielle d'un ensemble de spins électroniques	140
6.1.3	Relaxation du spin électronique en présence d'un champ magnétique extérieur	141
6.2	Mise en évidence de la relaxation de Merkulov sur ensemble de boîtes dopées p .	142
6.3	Mise en évidence du mécanisme de relaxation de Merkulov sur une boîte quantique unique	145
6.3.1	Polarisation circulaire de X^+ en excitation impulsionnelle	145
6.3.2	Effets sur le X^+ en excitation continue sans champ magnétique	147
6.3.3	Modulation rapide de la polarisation circulaire de l'excitation	149
6.4	Polarisation des noyaux en absence de champ magnétique extérieur	153
6.4.1	Dépendance du temps de dépolarisation nucléaire T_d dans le régime des faibles champs magnétiques	154
6.4.2	Evaluation du champ Knight	156
6.4.3	Polarisation dynamique des spins nucléaires observée sur ensemble de boîtes	159
6.5	Bilan	163
	Conclusion	167

Introduction

Au cours des vingt dernières années, les boîtes quantiques ont permis à la physique des semiconducteurs d'explorer et de rendre compte de nouveaux phénomènes. Cela est dû, en premier lieu, au fort confinement des porteurs dans une région de dimension nanométrique et au spectre électronique discret qui en résulte. Ces caractéristiques fondamentales sont au coeur de nombreuses recherches, allant de l'opto-électronique à l'information quantique.

Ce travail de thèse s'inscrit clairement dans la deuxième thématique. Le spin d'un électron piégé dans une boîte quantique constitue une observable bien protégée des mécanismes de relaxation fonctionnant dans matériaux massifs et puits quantiques¹ ; il est alors suffisamment isolé des sources de décohérences pour permettre l'observation des délicates superpositions entre les états "up" et "down"². Les boîtes quantiques apparaissent donc comme un système attractif pour la réalisation de portes logiques quantiques, utilisant le spin électronique comme "Q-bit".

Cependant le fort confinement exalte d'autres mécanismes dépendant du spin limitant le temps de cohérence, notamment l'interaction hyperfine avec les noyaux. L'interaction hyperfine, équivalente à un champ magnétique aléatoire agissant sur le spin de l'électron est à l'origine d'un mécanisme de déphasage, en un temps typique de la nanoseconde. L'un des objectifs de ce travail de thèse consistait justement à mettre en lumière le rôle fondamental du couplage hyperfin par spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques.

L'étude des effets nucléaires a pris une place très importante, dans la communauté des physiciens travaillant sur les boîtes quantiques ; le nombre croissant de publications depuis l'année 2005, traitant de ce sujet en témoigne. Au cours de ce travail de thèse, nous avons eu la possibilité d'examiner divers aspects relatifs à ces effets, principalement la polarisation

¹M. Kroutvar *et al.*, Nature **432**, 81 (2004)

²A. Greilich *et al.*, Science **313**, 341 (2006)

dynamique des noyaux (Chap. 5) et la relaxation du spin électronique induite par l'interaction hyperfine (Chap. 6). L'abondance de résultats récents dans la littérature nous a conduit, parfois, à les reproduire dans ce manuscrit, afin d'étayer nos propres expériences et les conclusions qui en découlent.

Ce manuscrit est organisé autour de six chapitres :

Nous exposerons les notions essentielles du pompage optique orienté dans les structures semiconductrices (Chap. 1). Aussi, nous verrons que l'orientation optique du spin, dans une boîte quantique, nécessite de former des états trions, caractérisés par la présence d'une configuration singulet de spin.

La partie suivante (Chap. 2) sera consacrée à la caractérisation du dispositif permettant le contrôle de la charge des boîtes quantiques. Les observations menées aussi bien sur boîtes uniques que sur un ensemble de boîtes, permettront d'identifier clairement la luminescence des trions positifs et négatifs.

L'orientation optique des trions (Chap. 3), pour un ensemble de boîtes, permettra de mettre en évidence, notamment, l'influence de l'interaction hyperfine sur la relaxation du spin électronique. Cette première appréhension du phénomène, menée par des expériences de luminescence résolue en temps, sera fortement complétée dans le chapitre 6, qui décrira les expériences réalisées sur boîtes quantiques uniques.

Enfin, le chapitre 4 servira à introduire les éléments et le formalisme nécessaires à la description de l'interaction électron/noyaux dans les semiconducteurs, dont une manifestation sera détaillée dans le chapitre 5 qui traitera de la polarisation dynamique des spins nucléaires.

Chapitre 1

Les boîtes quantiques auto-assemblées

Sommaire

1.1 Croissance auto-organisée des boîtes quantiques InAs sur substrat GaAs	5
1.2 Structure électronique et orientation optique du spin : des matériaux massifs aux boîtes quantiques	7
1.2.1 Etude dans le massif	7
1.2.2 La couche de mouillage des boîtes quantiques : un puits quantique . .	15
1.2.3 Structure électronique d'une boîte quantique d'InAs/GaAs	18
1.3 Structure fine excitonique et conséquences	22
1.3.1 Structure fine de l'exciton neutre	23
1.3.2 Orientation optique des porteurs dans la boîte quantique	25

Ce chapitre va permettre d'introduire les notions essentielles relatives aux boîtes quantiques InAs/GaAs. Nous verrons qualitativement, de quelle manière le confinement des porteurs dans les trois directions de l'espace, isole suffisamment leur spin, afin d'observer des temps de relaxation beaucoup plus longs que dans les matériaux massifs. Il sera aussi question de bien caractériser les états électroniques, pour comprendre comment les expériences d'optique résolues en polarisation permettent d'étudier l'orientation du spin. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés principalement à la relaxation du spin de l'électron et du trou, qui obéit à des mécanismes différents de celle du spin (moment angulaire) des excitons (*c.f* thèse d'Ivan Favero [1]).

Enfin, ce chapitre d'introduction commencera par la description du mode de croissance des boîtes quantiques auto-organisées, dont la maîtrise doit beaucoup à J.M. Gérard, travaillant alors au CNET de Bagneux.

1.1 Croissance auto-organisée des boîtes quantiques InAs sur substrat GaAs

La croissance auto-organisée des boîtes selon le mode de croissance dit de Stanski/Krastanov, utilise les méthodes d'épitaxie par jet moléculaire. Cette dernière consiste à déposer une couche

solide A sur un substrat cristallin B, en prolongeant son ordre atomique. Cependant, si les matériaux A et B présentent un grand désaccord de paramètres de maille, comme c'est le cas pour le couple InAs et GaAs ¹, une nouvelle organisation de surface apparaît, formant des îlots de taille nanométrique.

La formation de ces îlots se fait en deux étapes. La première monocouche d'InAs est épitaxiée sur GaAs, en compression dans le plan, et adapte son paramètre de maille à celui du GaAs [2]. Ensuite, à partir d'une certaine épaisseur critique, ~ 1.7 monocouche, il y a relaxation de la contrainte, et la croissance devient tri-dimensionnelle : il y a nucléation d'îlots sur la première monocouche d'InAs, qu'on appelle couche de mouillage, ou en anglais "Wetting Layer". La figure 1.1 donne une illustration de la formation de ces îlots, qu'on nomme plus généralement boîtes quantiques.

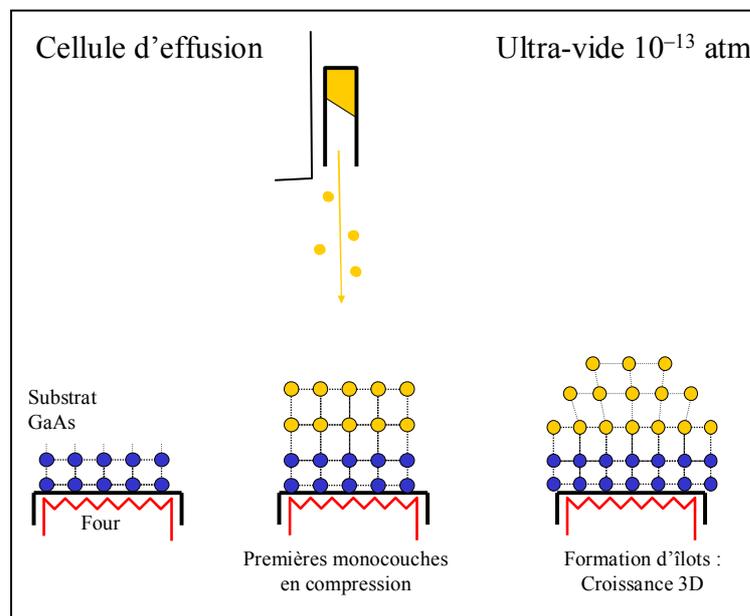


FIG. 1.1: Mode de croissance Stranski/Krastanov dans un bâti d'épitaxie par jet moléculaire

Les boîtes quantiques ont alors des dimensions typiques de 5 nm selon l'axe de croissance et environ 30 nm dans le plan. Elles sont distribuées aléatoirement sur la couche de mouillage, avec une densité surfacique de $\sim 2.10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Néanmoins, il est possible d'obtenir, sous certaines conditions de croissance (température, vitesse de croissance), une densité surfacique de l'ordre de 5.10^9 cm^{-2} , sur une région de quelques millimètres de longueur sur le substrat, appelée "zone frontière". La spectroscopie d'objets uniques nécessite de travailler justement dans la région de faible densité. Les boîtes sont très généralement de forme pyramidale [3, 4, 5] (dont la base peut être rectangulaire ou en forme de losange, avec un allongement dans la direction $[1\bar{1}0]$), comme le montrent les images 1.2 a et b. La figure 1.2b mérite sans doute quelques commentaires. Il

¹ $a(\text{InAs}) = 6.058 \text{ \AA}$ et $a(\text{GaAs}) = 5.653 \text{ \AA}$ à température ambiante, soit une différence relative de 7%

s'agit d'une image AFM d'une boîte dans la zone frontière (faible densité). On remarque alors que la nucléation de la boîte s'est faite au détriment de la couche de mouillage, qui a disparu à proximité. Ceci illustre en particulier les fluctuations de l'environnement des boîtes, qui sont peut-être plus importantes dans la zone frontière. En conséquence, toute observation réalisée sur une boîte quantique unique devra être répétée sur d'autres boîtes uniques, afin de légitimer le résultat.

Cependant, les boîtes quantiques des images AFM ne sont pas optiquement actives : les liaisons pendantes laissées à la surface des boîtes sont des centres de recombinaison non radiatifs très efficaces pour les porteurs. Il faut donc les encapsuler dans une matrice de GaAs, ce qui a aussi comme conséquence une modification morphologique. Les boîtes enterrées prennent alors une forme de lentilles[6] très aplaties de hauteur $\sim 2nm$ et de dimension transverse environ 20 nm, comme le montre la figure 1.2c. En plus de cela, la composition s'en trouve modifiée : les boîtes ne sont certainement plus pures en InAs, en raison de l'interdiffusion du Gallium : seul le coeur est en InAs, et la périphérie est composé d'un alliage ternaire $In_{1-x}Ga_xAs$, avec un possible gradient de composition en Gallium [7].

Le contrôle du positionnement des boîtes quantiques auto-assemblées reste encore actuellement un véritable challenge pour les épitaxieurs. Ceci serait, par exemple, fort utile pour la physique des émetteurs en cavités optiques, pour optimiser le couplage entre l'émission de la boîte et un mode du champ électromagnétique confiné. Pour cela, il existe plusieurs méthodes expérimentales. Le substrat peut être "patterné" afin de contrôler le champ des contraintes en surface, pour localiser en des régions préférentielles, la croissance des boîtes. Aussi, comme le montre la figure 1.2c, il est possible d'empiler plusieurs boîtes quantiques, en les séparant d'une couche de GaAs, suffisamment fine pour permettre un auto-alignement vertical induit par le champ de contrainte. La localisation de la dernière boîte empilée, sur la surface permet alors de connaître l'emplacement des boîtes enterrées [8].

1.2 Structure électronique et orientation optique du spin : des matériaux massifs aux boîtes quantiques

Dans cette section nous présenterons les idées maîtresses de ce qu'on appelle le pompage optique orienté, dans les structures semiconductrices. Ceci nous conduira à une analyse fine de la structure de bande des matériaux massifs, afin de comprendre les différents phénomènes de relaxation du spin.

1.2.1 Etude dans le massif

1.2.1.1 Éléments de la théorie $k.p$ [9]

Afin de calculer la structure de bandes électroniques dans un cristal semiconducteur, nous rappelons qu'il faut résoudre l'équation de Schrödinger pour un électron dans le potentiel cris-

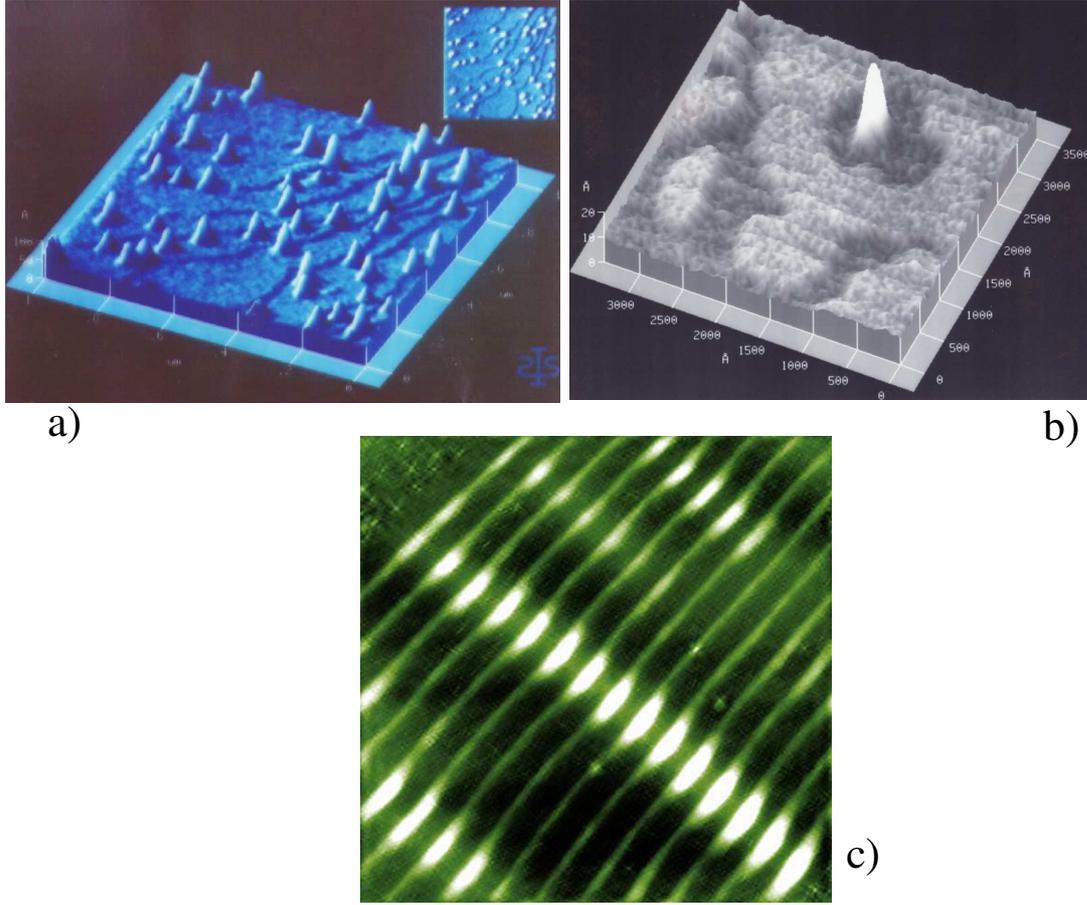


FIG. 1.2: a) et b) Images AFM réalisée par J.M. Moison c) Image STM sur le bord clivé d'un échantillon (par B. Legrand à l'IEMN) constitué d'une succession de plan de boîtes quantiques montrant leur corrélation spatiale sous l'effet des contraintes.

tallin (cas non relativiste) :

$$H\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = \left(\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + V_{cristal}(\vec{r}) \right) \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}}\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.1)$$

où $V_{cristal}(\vec{r})$ est le potentiel périodique du cristal, m_0 la masse de l'électron libre et les fonctions $\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r})$ sont les ondes de Bloch de vecteur d'onde \vec{k} , délocalisées sur l'ensemble du matériau :

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

et n est l'indice de bande (associée à la représentation irréductible du groupe de symétrie du matériau au point $\vec{k} = \vec{0}$).

L'action de l'opérateur \hat{p}^2 sur les fonctions $\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r})$: $\hat{p}^2(\Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r})) = [(\hat{p} + \hbar\vec{k})^2 u_{n,\vec{k}}(r)]$ permet de donner une nouvelle formulation de l'équation 1.1 :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar}{m_0} \vec{k} \cdot \hat{p} + V_{cristal}(\vec{r}) \right) u_{n,\vec{k}}(r) = E_{n,\vec{k}} u_{n,\vec{k}}(r) \quad (1.3)$$

La théorie $\vec{k} \cdot \vec{p}$ utilise maintenant les fonctions de Bloch en centre de zone $u_{n,\vec{0}}$ comme base complète, sur laquelle sont développées les fonctions $u_{n,\vec{k}}$, en traitant en perturbation le terme $\vec{k} \cdot \vec{p}$. On obtient alors :

$$u_{n,\vec{k}} = u_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar}{m_0} \sum_{m \neq n} \frac{\langle u_{n,\vec{0}} | \vec{k} \cdot \hat{p} | u_{m,\vec{0}} \rangle}{E_{n,\vec{0}} - E_{m,\vec{0}}} u_{m,\vec{0}} \quad (1.4)$$

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\langle u_{n,\vec{0}} | \vec{k} \cdot \hat{p} | u_{m,\vec{0}} \rangle|^2}{E_{n,\vec{0}} - E_{m,\vec{0}}} \quad (1.5)$$

L'équation de dispersion (1.5) réécrit sous la forme $E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n}$ permet de définir la masse effective m_n de l'électron sur la bande n . La masse effective permet, dans un formalisme à une bande, de tenir compte de l'ensemble des perturbations $\vec{k} \cdot \vec{p}$ de toutes les bandes $m \neq n$. Ici, nous nous intéressons aux excitations optiques au voisinage du gap correspondant à la promotion d'un électron de la dernière bande de valence occupée vers la première bande de conduction vide ; la désexcitation radiative correspondante, donne lieu à la luminescence. On peut donc réduire la base de travail à une bande de conduction et trois bandes de valence, à priori toutes dégénérées en spin. De plus en $\vec{k} = \vec{0}$, les fonctions $u_{n,\vec{0}}$ sont solution de :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + V_{cristal}(\vec{r}) \right) u_{n,\vec{0}}(r) = E_{n,\vec{0}} u_{n,\vec{0}}(r) \quad (1.6)$$

$\hat{H}(\vec{k} = \vec{0})$ commute avec l'opérateur de moment cinétique orbital \hat{L} , si bien que l'on peut représenter les $u_{n,\vec{0}}$ par les notations $|n, L, m_L; s_z\rangle$, ou de manière plus condensée, par les notations "atomiques".

Les fonctions $u_{n,\vec{0}}$ possèdent les symétries des orbitales atomiques qui donnent naissance à la bande de valence (états liants issus du recouvrement des orbitales atomiques p) et à la bande de conduction (états non-liants issus du recouvrement des orbitales atomiques s).

pour la bande de conduction :	
fonction de Bloch	notation
$u_{1,\vec{0}}$	$ S\rangle \otimes \uparrow\rangle$
$u_{2,\vec{0}}$	$ S\rangle \otimes \downarrow\rangle$
pour la bande de valence :	
fonction de Bloch	notation
$u_{3,\vec{0}}$	$ X\rangle \otimes \uparrow\rangle$
$u_{4,\vec{0}}$	$ X\rangle \otimes \downarrow\rangle$
$u_{5,\vec{0}}$	$ Y\rangle \otimes \uparrow\rangle$
$u_{6,\vec{0}}$	$ Y\rangle \otimes \downarrow\rangle$
$u_{7,\vec{0}}$	$ Z\rangle \otimes \uparrow\rangle$
$u_{8,\vec{0}}$	$ Z\rangle \otimes \downarrow\rangle$

L'étude précédente ne permet pas de décrire complètement la structure complexe de la bande de valence. Par exemple, la perturbation $\vec{k} \cdot \vec{p}$, conserve la dégénérescence des états de valence en $\vec{k} = \vec{0}$.

Interaction Spin-Orbite

En tenant compte de l'interaction spin-orbite $\hat{H}_{S.O.} = \frac{\hbar}{4m_0^2c^2} \hat{S} \cdot (\vec{\nabla}V \times \hat{p})$, le mouvement de l'électron et son spin sont couplés, avec comme conséquence que l'opérateur de spin ne commute plus avec l'hamiltonien total $\hat{H} + \hat{H}_{S.O.}$. Il en résulte une levée de dégénérescence des états de valence au centre de la première zone de Brillouin entre une bande Γ_8 (quatre fois dégénérée à $\vec{k} = \vec{0}$) correspondant aux états de trous lourds et de trous légers, et une bande Γ_7 (dégénérée deux fois) dite bande "split-off", se situant à une énergie Δ_{SO} en dessous des premiers. Maintenant les nouveaux états stationnaires sont les fonctions propres de l'opérateur \hat{J}^2 et J_z , où $\hat{J} = \hat{L} + \hat{S}$ est le moment angulaire total. On peut donc les désigner par la notation $|n, J, J_z\rangle$, et sont des combinaisons linéaires des fonctions de base : $|S, \uparrow\rangle, |S, \downarrow\rangle, |X, \uparrow\rangle, |X, \downarrow\rangle, |Y, \uparrow\rangle, |Y, \downarrow\rangle, |Z, \uparrow\rangle, |Z, \downarrow\rangle$

$ J, J_z\rangle$	Développement sur les fonctions $ S\rangle, X\rangle, Y\rangle, Z\rangle$	bande
$ 1/2, 1/2\rangle$	$i S, \uparrow\rangle$	Γ_6
$ 1/2, -1/2\rangle$	$i S, \downarrow\rangle$	Γ_6
$ 3/2, 3/2\rangle$	$1/\sqrt{2} (X + iY), \uparrow\rangle$	$\Gamma_8^{H.H}$
$ 3/2, -3/2\rangle$	$-1/\sqrt{2} (X - iY), \downarrow\rangle$	$\Gamma_8^{H.H}$
$ 3/2, 1/2\rangle$	$-\sqrt{2/3} Z, \uparrow\rangle + 1/\sqrt{6} (X + iY), \downarrow\rangle$	$\Gamma_8^{L.H}$
$ 3/2, -1/2\rangle$	$-\sqrt{2/3} Z, \downarrow\rangle - 1/\sqrt{6} (X - iY), \uparrow\rangle$	$\Gamma_8^{L.H}$
$ 1/2, 1/2\rangle$	$\sqrt{1/3} Z, \uparrow\rangle + 1/\sqrt{3} (X + iY), \downarrow\rangle$	Γ_7
$ 1/2, -1/2\rangle$	$\sqrt{1/3} Z, \downarrow\rangle - 1/\sqrt{3} (X - iY), \uparrow\rangle$	Γ_7

Kohn et Luttinger ont montré que l'action due à l'interaction spin-orbite dans le sous espace des états Γ_8 , pouvait être paramétrée, en tenant compte des symétries du cristal blende de zinc (groupe de symétrie T_d), par un jeu de trois coefficients $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ [10]. Les masses effectives des trous lourds et légers sont données : $m_{\tilde{h}}^z = m_0 (\gamma_1 - 2\gamma_2)^{-1}$ et $m_{\tilde{l}}^z = m_0 (\gamma_1 + 2\gamma_2)^{-1}$. Le tableau suivant rappelle les valeurs des structures de bandes pour *GaAs* et *InAs* :

Paramètres	GaAs	InAs
gap (eV)	1.42	0.41
Δ_{SO} (eV)	0.341	0.38
γ_1	7.0	19.67
γ_2	2.25	8.37
γ_3	2.9	9.29

Nous pouvons d'ores et déjà mettre en avant l'importance de l'interaction spin-orbite, sur les états de valence de moment orbital $L = 1$: la levée de dégénérescence des bandes Γ_7 et Γ_8

permet de sélectionner uniquement les transitions optiques faisant intervenir les états trous lourds et légers. Ceci constitue la clé du pompage optique orienté dans les semiconducteurs $III - V$, qui repose sur une sélection de spin des porteurs photocréés grâce à une sélection en énergie facile à mettre en oeuvre.

Les états de conduction de moment orbital $L = 0$ ne devraient pas a priori être affectés par le couplage spin-orbite. Cependant, l'absence de centre d'inversion dans les composés $III - V$ autorise certains couplages avec les bandes de valence, et les bandes de conduction de plus haute énergie. Ces effets conduisent à l'ajout d'un terme supplémentaire dans la dispersion de la bande de conduction :

$$E_{\Gamma_6, \vec{k}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \delta(\vec{\kappa} \cdot \vec{S}) \quad (1.7)$$

où $\vec{\kappa}$ est un vecteur dont les composantes sont cubique en k : $\kappa_z = k_z(k_x^2 - k_y^2)$; les autres composantes sont obtenues par permutation circulaire sur les indices (x, y, z) . δ dépend notamment de la structure fine des bandes de valences. Ce terme dit de Dresselhaus lève la dégénérescence de spin des états de conduction, d'autant plus qu'on s'écarte du centre de la première zone de Brillouin. Ce "spin-splitting" sera à l'origine d'un mécanisme de relaxation du spin de l'électron photocréé.

1.2.1.2 Orientation optique [11]

L'absorption inter-bande d'un photon conduit à la création d'une paire électron/trou. Si l'excitation optique est polarisée circulairement, le photon possède un moment angulaire dont la projection sur l'axe de propagation vaut ± 1 . Ce moment angulaire est distribué entre le spin de l'électron et du trou, selon les règles de sélection optique, que nous allons voir.

Les règles de transitions optiques peuvent être déterminées à partir des probabilités de transition d'un état de valence vers un état de conduction, sous l'effet de l'interaction dipolaire électrique :

$$\hat{H}_{dip} = -\frac{e}{m_0} \vec{A} \cdot \hat{p} \quad (1.8)$$

où \vec{A} est le potentiel vecteur du champ électromagnétique.

Considérons une onde plane polarisée circulairement ($\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y$), se propageant suivant la direction cristallographique $[001]$. Alors les forces d'oscillateur des transitions (état de valence \rightsquigarrow état de conduction) sont proportionnelles au carré de l'élément de matrice :

$$|\langle c | (\hat{p}_x \pm i\hat{p}_y) | v \rangle|^2 \quad (1.9)$$

où par convention le signe $+$ correspond à une polarisation σ^- et le signe $-$ à σ^+ .

En se rappelant que seuls les éléments de matrice du type $\langle S, \uparrow | \hat{p}_x | X, \uparrow \rangle = \langle S, \uparrow | \hat{p}_y | Y, \uparrow \rangle = \langle S, \uparrow | \hat{p}_z | Z, \uparrow \rangle$ sont non nuls par symétrie, on peut aisément calculer les forces d'oscillateur relatives de chaque transition, qui sont reportées sur le schéma 1.3.

Nous voyons que les forces d'oscillateur des transitions $\Gamma_8^{H,H} \rightsquigarrow \Gamma_6$ et $\Gamma_8^{L,H} \rightsquigarrow \Gamma_6$ ne sont pas identiques. Cette dissymétrie permet à l'excitation optique polarisée circulairement de

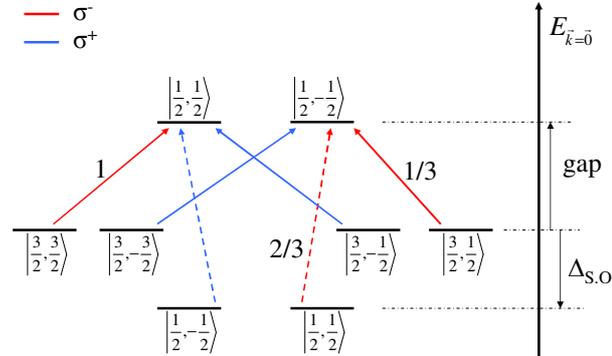


FIG. 1.3: Règles de sélection optique pour les transitions interbandes d'un semiconducteur massif III/V.

photocréer en moyenne trois fois plus l'électron de conduction dans un état de spin "up" que dans l'état "down", comme le souligne le schéma 1.3.

La polarisation électronique est définie par $P_e = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}$. Si seules les transitions $\Gamma_8 \rightsquigarrow \Gamma_6$ sont excitées, $P_e = 50\%$, par contre si l'énergie d'excitation est supérieure à $E_g + \Delta_{s.o.}$, la contribution des transitions $\Gamma_7 \rightsquigarrow \Gamma_6$ font que P_e s'annule.

Les mécanismes de relaxation du spin vont faire en sorte, qu'au cours du temps, la polarisation de spin électronique, initialement à 50% décroît. On définit alors le temps caractéristique des mécanismes de relaxations du spin τ_s , et le temps de vie radiatif de l'électron τ_r . Si $\tau_s \ll \tau_r$, alors la polarisation de spin électronique est détruite ; par contre si $\tau_s \sim \tau_r$, on peut espérer que la luminescence garde la mémoire de la polarisation de spin électronique, et donc qu'elle soit partiellement polarisée circulairement. Le taux de polarisation circulaire est défini par $P_c = \frac{I^{\sigma^+} - I^{\sigma^-}}{I^{\sigma^+} + I^{\sigma^-}}$, pour une excitation polarisée circulairement $\sigma+$. Dans le cas limite où $\tau_s \gg \tau_r$, on trouve facilement que P_c atteint alors 25%², correspondant à une polarisation de spin électronique de 50%. La polarisation circulaire de la recombinaison radiative, peut s'exprimer de manière plus générale :

$$P_c = \frac{0.25}{1 + \tau_r/\tau_s} \quad (1.10)$$

Ainsi la mesure du taux de polarisation circulaire est un indicateur pertinent, pour comprendre les processus de relaxation du spin, et comment ces derniers se trouvent modifiés par des contraintes externes (champ magnétique, contraintes, etc...). Ceci sera par exemple mis à profit pour comprendre le mécanisme de relaxation du spin électronique, dans une boîte quantique via l'interaction hyperfine, dans le dernier chapitre de cette thèse.

²un électron de spin "up", par exemple, peut se recombinaison par deux chemins donnant soit un photon σ^+ , soit un photon σ^- , mais pondérés dans le rapport des forces d'oscillateur correspondantes ; idem pour l'électron de spin "down".

Mécanismes de relaxation de spin dans les matériaux massifs

Rapidement, nous allons passer en revue certains mécanismes types de relaxation de spin dans les semiconducteurs [11].

Mécanisme de D'yakonov-Perel (D-P)

Ce mécanisme agit dans un cristal semiconducteur sans centre d'inversion. Dans ce cas, le terme anisotrope en k^3 corrigeant la relation de dispersion des électrons de conduction, couple les états de spins opposés. Cette interaction peut se concevoir comme un champ magnétique effectif, qui dépend du vecteur \vec{k} : pour \vec{k} donné, le spin précesse autour de ce champ effectif $\vec{B}(\vec{k})$. On comprend alors que si l'électron subit des processus diffusifs, le champ magnétique va fluctuer causant la relaxation de spin. Il est prédit que le temps de relaxation du spin, par ce mécanisme, est proportionnel à fréquence de "collision" $1/\tau_{\vec{k}}$, où $\tau_{\vec{k}}$ est le temps moyen de relaxation du moment. Ce mécanisme est alors prépondérant dans le régime des hautes températures, conduisant à un effet de "rétrécissement par le mouvement". On peut aisément comprendre la dépendance de τ_s avec $\tau_{\vec{k}}$, en considérant une analogie avec la marche au hasard, comme le montre la figure 1.4

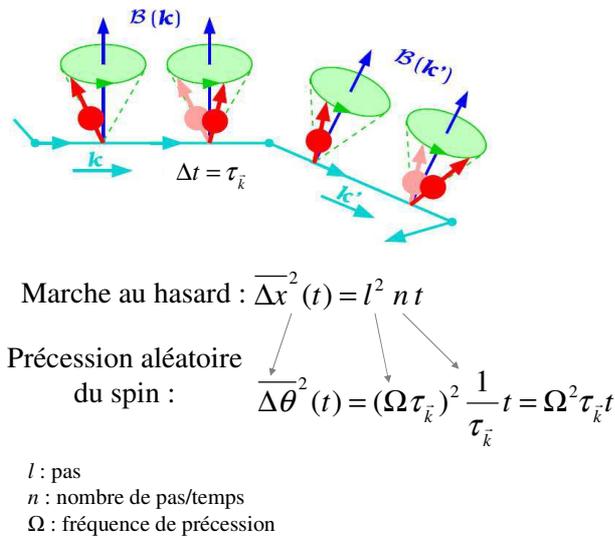


FIG. 1.4: Mécanisme de D'yakonov-Perel

Le temps de relaxation de spin est alors défini lorsque la moyenne quadratique de l'angle de rotation de la composante suivant z du spin $\overline{\Delta \theta^2}$ est de l'ordre de 1, ce qui donne $1/\tau_s \sim \Omega(\vec{k})^2 \tau_{\vec{k}}$

Mécanisme de Elliot-Yaffet (E-Y)

En raison de l'interaction spin-orbite, les états de Bloch de l'électron de conduction ne sont pas purs en spin ; en effet, en toute rigueur la perturbation $k \cdot p$ avec les états Γ_8 et Γ_7 fait que la fonction d'onde de l'électron de conduction n'est pas factorisable en une composante

orbitale et une composante de spin ³. Il en résulte que l'état de spin de l'électron n'est pas préservé au cours d'un processus de diffusion, *même si ce dernier n'est pas dépendant du spin*. Considérons un potentiel diffuseur de l'électron $U(\vec{r})$. Celui peut être l'interaction avec le potentiel coulombien d'une impureté ionisée (contribution de Elliot), ou encore l'interaction avec les phonons - acoustiques ou optiques - (contribution de Yaffet). Alors $1/\tau_s$ est lié à l'élément de matrice $|\langle \vec{k}, \uparrow | U(\vec{r}) | \vec{k}', \downarrow \rangle|^2$, qui est proportionnel à $1/\tau_{\vec{k}}$. Ainsi, pour le mécanisme de Elliot-Yaffet τ_s évolue comme $\tau_{\vec{k}}$. La dépendance avec $\tau_{\vec{k}}$ constitue une différence majeure, par rapport au mécanisme D-P : l'augmentation des fréquences de "collision" exalte l'efficacité du mécanisme E-Y et inhibe celle de D-P. On peut voir alors les choses de la manière suivante : pour le mécanisme de E-Y, la précession est gelée entre chaque collision, et se produit suivant une direction aléatoire uniquement pendant le temps très bref de la collision. Donc, plus il y a de collisions, plus la mémoire sur l'orientation originale du spin se dissipe. Par contre, pour le mécanisme D-P, dans le régime où $\tau_k \Omega(\vec{k}) \gg 1$, ce déphasage similaire a lieu entre deux collisions, puisque le spin de l'électron continue de précesser autour de $\vec{B}(\vec{k})$.

Interaction hyperfine

Il s'agit de l'interaction entre le spin électronique et les spins des noyaux. L'environnement nucléaire, équivalent à un champ magnétique aléatoire, participe à un mécanisme de relaxation du spin électronique similaire à celui de D'yakonov-Perel. Les chapitres 4, 5 et 6 de ce manuscrit seront exclusivement consacrés à cette interaction.

Influence d'un champ magnétique appliqué

L'efficacité comparée de ces mécanismes, en fonction du matériau, du dopage et de la température, a fait l'objet de nombreuses études, dans les années 70-80, notamment en utilisant l'effet Hanle. Il consiste à observer la dépolarisation de la luminescence en fonction de l'intensité du champ magnétique transverse à l'axe optique et sous excitation polarisée circulairement. Le champ a pour effet de faire précesser le spins des électrons entraînant une dépolarisation de la luminescence et ce d'autant plus rapidement que le temps de vie du spin est long. On montre facilement que :

$$P_c(B) = \frac{P_c(0)}{1 + (\Omega_L T_s)^2} \quad (1.11)$$

où $\Omega_L = g_e \mu_B B / \hbar$, $1/T_s = 1/\tau_s + 1/\tau_r$ est le temps de vie effectif du spin électronique et $P_c(0) = 0.25/(1 + \tau_s/\tau_r)$. La dépendance Lorentzienne des courbes Hanle $P_c = f(B)$ permet alors de remonter au temps de relaxation de spin τ_s :

$$\tau_s = \frac{0.25}{0.25 - P_c(0)} \frac{\hbar}{g_e \mu_B B_{1/2}} \quad (1.12)$$

$$\tau_r = \frac{0.25}{P_c(0)} \frac{\hbar}{g_e \mu_B B_{1/2}} \quad (1.13)$$

³C'est pourquoi ce mécanisme est prépondérant dans les matériaux de petit gap

où $B_{1/2}$ est défini par $P_c(B_{1/2}) = P_c(0)/2$.

Par contre, l'effet d'un champ magnétique longitudinal est en général, de limiter les processus de relaxation du spin électronique, si la fréquence de Larmor Ω_L est supérieure à la fréquence de collision $1/\tau_{\vec{k}}$. Examinons l'effet du champ longitudinal pour le mécanisme D-P. Dans le régime où $\Omega_L \tau_{\vec{k}} \gg 1$, l'angle de rotation du spin $\Delta\theta(B)$ est de l'ordre $\Omega(\vec{k})/\Omega_L$. Ainsi en reprenant les considérations vues plus haut, on trouve que $\frac{1}{\tau_s(B)} \sim \frac{1}{\tau_s(0)} \frac{1}{(\Omega_L \tau_{\vec{k}})^2}$. De plus il est clair que lorsque $\Omega_L \tau_{\vec{k}}$ tend vers zéro, alors $\tau_s(B)$ tend vers $\tau_s(0)$, ce qui nous amène à une formulation plus générale de la dépendance du temps de relaxation du spin en fonction du champ magnétique ⁴ :

$$\frac{1}{\tau_s(B)} = \frac{1}{\tau_s(0)} \frac{1}{1 + (\Omega_L \tau_{\vec{k}})^2} \quad (1.14)$$

L'effet du champ magnétique longitudinal peut révéler alors des signatures de certains mécanismes de dépolarisation. Sera-t-il supprimé pour des champs magnétiques faibles ou forts ? Ces considérations seront par exemple invoquées pour identifier la signature de l'interaction hyperfine sur la relaxation du spin confiné dans une boîte quantique au chapitre 6.

Dans cette partie, nous avons effectué un rapide tour d'horizon des mécanismes de relaxation de spin. Ils sont tous liés à l'existence et la complexité de la structure de bande des matériaux massifs. Dans les boîtes quantiques, le confinement quantique des porteurs dans les trois directions de l'espace, conduisant à une densité d'états électroniques discrètes s'accompagnerait alors d'une inhibition quasi-complète de ces mécanismes, faisant ainsi des boîtes quantiques un objet prometteur pour assurer un temps de relaxation du spin très long.

De plus, une autre question se pose. Comment dépasser la limite théorique d'une polarisation de spin électronique de 50% ? Nous allons voir maintenant que l'action du confinement et des effets de contraintes sur les bandes de valence, vont permettre d'accéder à une polarisation de spin théorique de 100%.

1.2.2 La couche de mouillage des boîtes quantiques : un puits quantique

Pour les hétérostructures semiconductrices, le calcul des états électroniques se font dans l'approximation de la fonction enveloppe. Cette approximation consiste à découpler les variations lentes du potentiel des variations rapides, à l'échelle des distances inter-atomiques. L'équation de Schrodinger est alors :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + V_{\text{cristal}}(\vec{r}) + V_{\text{heterostructure}}(\vec{r}) \right) \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}} \Psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.15)$$

où $\Psi_n(\vec{r})$ est prise sous la forme $\chi_n(\vec{r})u_{n,\vec{k}}(\vec{r})$ avec $\chi_n(\vec{r})$ la fonction enveloppe. Remarquablement, elle est solution de :

$$\left(-\vec{\nabla} \frac{\hbar^2}{2m_n(\vec{r})} \vec{\nabla} + V_{\text{heterostructure}}(\vec{r}) \right) \chi_n(\vec{r}) = (E_n - E_{n,\vec{0}}) \chi_n(\vec{r}) \quad (1.16)$$

⁴Cette formule sera démontrée rigoureusement dans le cadre de la polarisation dynamique des spins nucléaires.

où $m_n(\vec{r})$ prend en compte la variation de la masse effective d'un matériaux à l'autre, et E_n est l'énergie de confinement.

L'équation 1.16 n'est valable que dans le cas d'une bande simple où la masse effective ne dépend pas de \vec{k} , c'est-à-dire dans l'approximation parabolique. Le calcul des fonctions enveloppes des états de valence nécessite un formalisme à plusieurs bandes, et donne donc une équation de Schrodinger pour la fonctions enveloppe plus difficile à obtenir [9].

De manière générale, pour le puits quantique, les états quantiques sont de la forme $|n_c, \vec{k}_\perp\rangle$ pour les états de conduction et $|n_v, \vec{k}_\perp\rangle$ pour ceux de valence, où $n_{c/v}$ est relatif aux nombres d'états confinés dans le puits. Ils sont alors représentés par une fonction d'onde spatiale de la forme :

$$\Psi_{n_{c/v}, \vec{k}}(\vec{r}) = \chi_{n_{c/v}}(z) \cdot e^{i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}} u_{n_{c/v}, \vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.17)$$

où le confinement des porteurs est selon la direction de croissance $[001]$. Du fait de l'invariance par translation dans la direction perpendiculaire à l'axe de croissance, pour chaque valeur du nombre entier $n_{c/v}$ est associé le continuum 2D de la densité d'état :

$$\rho_{n_{c/v}}^{2D} = \frac{m_{n_{c/v}} S}{2\pi \hbar^2} H_{n_{c/v}}(E) \quad (1.18)$$

où $H_{n_c}(E) = H(E - E_g - E_{n_c})$ ⁵ pour les états de conduction et $H_{n_v}(E) = H(E_{n_v} - E)$ pour ceux de valence. Cependant, nous avons déjà vu que la couche de mouillage possède de nombreux défauts. Nous savons seulement qu'au seuil de nucléation des boîtes, son épaisseur vaut en moyenne ~ 1.7 monocouches. Récemment, P. Koenraad a montré la ségrégation partielle de l'indium, composant la couche de mouillage dans la matrice de GaAs, comme le montre le cliché STM de la figure 1.5⁶. A. Catellani *et al.* ont calculé que la prise en compte des défauts d'épaisseur d'un tel puits quantique, conduisait à une redistribution des états 2D au seuil d'absorption du fait de la présence d'états faiblement localisés (*cf* 1.6).

N'oublions pas que la couche de mouillage est en compression dans le plan, et en élongation suivant la direction de croissance. Les contraintes ont pour effet de changer les énergies relatives du haut de la bande de valence et du bas de la bande de conduction. Il n'est pas question ici de reproduire l'hamiltonien des contraintes de Bir et Pikus, néanmoins on peut donner les conséquences principales. Pour la bande de conduction, seule la composante hydrostatique du champ des contraintes a un effet ; la renormalisation du bas de bande est donnée par $\Delta E_c = a_c(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz})$, où $\bar{\varepsilon}$ est le tenseur de déformation, et a_c est lié aux valeurs des constantes élastiques. Pour le haut de la bande de valence, les contraintes de cisaillements vont contribuer à la levée de dégénérescence trou lourd et léger : $\Delta E^{H.H} - \Delta E^{L.H} = \sqrt{\alpha((\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{xx})^2 + 12\varepsilon_{xy}^2) + \beta(\varepsilon_{zx}^2 + \varepsilon_{zy}^2)}$ où α, β sont des constantes du matériau, et $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$ pour une contrainte symétrique dans le plan (biaxiale)⁷.

La prise en compte des effets de contraintes permet alors de calculer les masses effectives au centre de zone de Brillouin et selon la direction de croissance $[001]$ du puits d'InAs contraint :

⁵ $H(E)$ est la fonction de Heavyside.

⁶ Contrairement aux images AFM au début du chapitre, ici les boîtes son enterrées

⁷ le gap de l'InAs contraint est de 0.53 eV alors que pour l'InAs non-contraint, il est de 0.42 eV

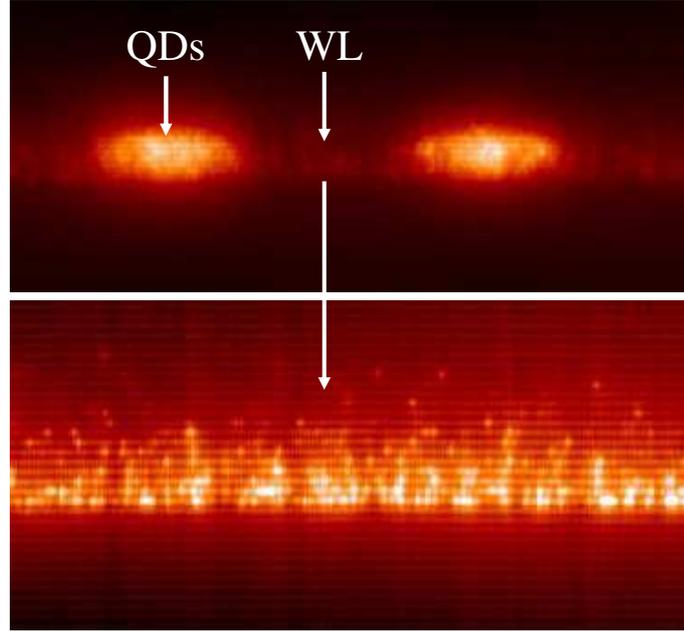


FIG. 1.5: Image X-STM de P. Koenraad illustrant la ségrégation de l'indium de la couche de mouillage vers le GaAs. On notera au passage l'irrégularité de l'interface couche de mouillage/GaAs [12]

Bande (en $\vec{k} = \vec{0}$)	masse effective (en unité de m_0)
Γ_6	0.067
$\Gamma_8^{H.H}$	-0.34
$\Gamma_8^{L.H}$	-0.086

Le rapport des masses effectives selon la direction de croissance pour les trous lourds et légers, est de l'ordre de quatre. L'effet important du confinement (qui dépend de la masse) va lever la dégénérescence en $\vec{k} = \vec{0}$: il est maintenant possible de sélectionner uniquement la transition $\Gamma_8^{H.H} \rightsquigarrow \Gamma_6$. La différence d'énergie entre trous lourds et légers n'est pas déterminée pour les boîtes quantiques, cependant $\Delta(HH - LH)$ a été mesuré à environ 30 meV pour un puits quantique contraint d'InAs/GaAs [13], de quelques monocouches d'épaisseurs. De ce fait, la polarisation électronique théorique P_e peut atteindre alors 100%.

Orientation optique des porteurs dans la couche de mouillage

Les probabilités de transition interbandes se généralisent, dans le formalisme de la fonction enveloppe, en $P_{v \rightarrow c} \propto |\langle \chi_c | \chi_v \rangle \langle u_c | \hat{p} | u_v \rangle|^2$. Comme pour les matériaux massifs, $\langle u_c | \hat{p} | u_v \rangle$ détermine les sélections optiques en polarisation alors que le produit scalaire $\langle \chi_c | \chi_v \rangle$ interdit le changement de symétrie des fonctions enveloppes, lors d'une transition optique. Nous avons donc des transitions du type $S_v \leftrightarrow S_c$, $P_v \leftrightarrow P_c$, etc...

Comme on le verra par la suite, on ne peut décrire la structure électronique des boîtes indépen-

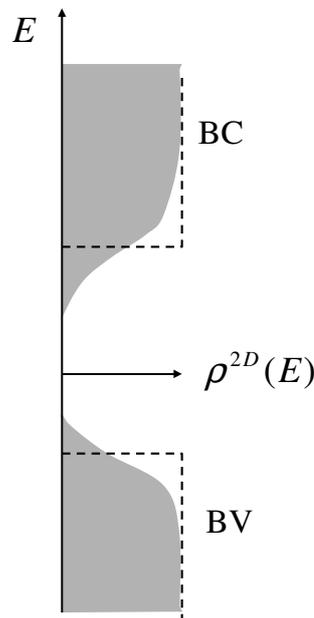


FIG. 1.6: Conséquence des défauts d'épaisseur sur la densité d'états 2D. En tiret, densité d'états du puits quantique idéal.

damment des états 2D de la couche de mouillage. Une question que l'on peut soulever, est l'injection des porteurs de spins orientés dans les boîtes quantiques, en excitant la couche de mouillage. Pour répondre à cette question importante, on peut par exemple se référer aux études menées sur les puits quantiques GaAs/AlGaAs, dont la direction de croissance est selon l'axe $[001]$. Les expériences de photoluminescence résolue temporellement [14] montrent que le temps de relaxation du spin de l'électron, à température cryogénique, est de l'ordre d'une centaine de picosecondes et pour le trou, seulement de quelques picosecondes, en raison du mélange non négligeable entre trou lourd et léger malgré la levée de dégénérescence, qui conduit à un mécanisme similaire à celui d'Elliot-Yaffet. Ces temps de vie du spin sont de l'ordre, voire même plus courts que pour les matériaux massifs : le degré de liberté k_{\perp} des porteurs dans le plan perpendiculaire à l'axe de croissance rend toujours les processus de relaxation de spin énoncés pour les massifs efficaces. Le temps de capture des porteurs, créés initialement dans la couche de mouillage, dans la boîte est mesuré à une dizaine de picosecondes, ainsi on peut considérer que le spin de l'électron conserve son orientation optique pendant les processus de relaxation sur le niveau fondamental de la boîte quantique, alors que le trou, photocréé dans la couche de mouillage a perdu son spin, une fois relaxé sur le niveau fondamental de valence de la boîte.

1.2.3 Structure électronique d'une boîte quantique d'InAs/GaAs

Dans cette section, nous nous limiterons à décrire les états électroniques d'une boîte possédant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance. Dans cette hypothèse,

le confinement des porteurs dans la boîte quantique peut être modélisé par un confinement intense de type puits quantique rectangulaire selon la direction de croissance, et un confinement parabolique plus lâche dans le plan perpendiculaire. Nous verrons plus loin les conséquences importantes de la brisure de cette symétrie. Les fonctions d'onde des états confinés $\chi_n(\vec{r})u_{n,\vec{\sigma}}$ sont bien sûr construits à partir des états de Bloch $|1/2, \pm 1/2\rangle$ pour les états de conduction et $|3/2, \pm 3/2\rangle$ pour les états de valence : seuls les trous lourds seront pris en considération, du fait de la séparation des états lourds et légers de plusieurs dizaines de meV. En raison de la symétrie cylindrique d'une boîte modèle, l'opérateur \hat{L}_z commute avec l'hamiltonien "enveloppe", ainsi les états confinés sont décrits avec la notation $|n_{c/v}, L, m_L\rangle$, ou en reprenant les notations atomiques usuelles $|S\rangle, |P\rangle$, etc...

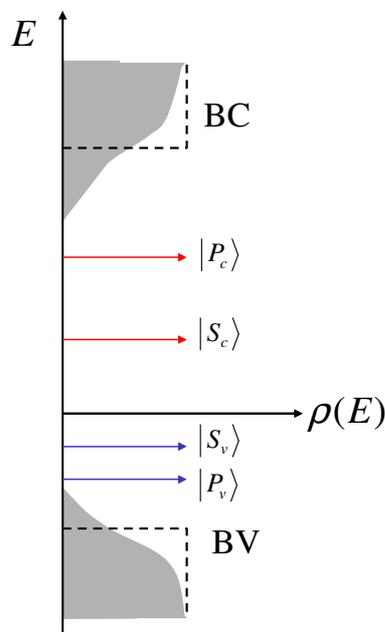


FIG. 1.7: Densité d'états pour une boîte quantique de symétrie cylindrique.

Spectre d'absorption d'une boîte quantique

La figure 1.7 montre la densité d'état discrète d'une boîte possédant deux états confinés. En absence d'asymétrie du potentiel de confinement dans le plan, les états $|P\rangle$ sont deux fois dégénérés, correspondants aux valeurs $m_L = \pm 1$. Contrairement à l'atome de symétrie sphérique, la boîte quantique possède un rapport de forme très faible (lentille aplatie), de ce fait l'état " p_z " est projeté très haut en énergie, et n'est pas confiné dans la boîte. La distance entre les états de conduction S et P est typiquement de 50 meV, alors que pour ceux de valence, seulement une dizaine de meV. L'effet de masse effective tient un rôle cruciale sur ces valeurs typiques. La densité d'états est directement liée au spectre d'absorption. Celui-ci a été calculé par A. Vasanelli pour une boîte quantique unique [15]. Son calcul d'absorption fait apparaître

plusieurs quasi-continuum qui s'étendent entre la transition fondamentale $S_v \rightsquigarrow S_c$ et la queue d'absorption de la couche de mouillage [15], comme le montre la figure 1.8. Il s'agit des transitions mixtes entre états confinés de la boîte et les états 2D de la couche de mouillage. A.

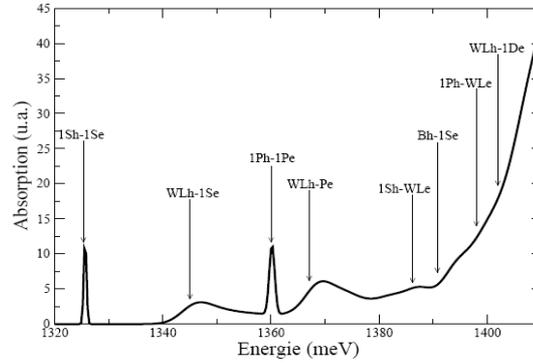


FIG. 1.8: Calcul de l'absorption d'une boîte quantique, faisant apparaître les transitions mixtes.

Vasanelli prédit que la transition mixte de plus basse énergie est du type $CM_h \rightsquigarrow S_e$, ce qui paraît bien naturel en raison de l'offset de la bande de valence pour le système InAs/GaAs qui est seulement de 288 meV alors que celui de la bande de conduction 697 meV. De plus la transition entre état discret $P_v \rightsquigarrow P_c$ peut être excitée simultanément avec les premières transitions mixtes. Néanmoins il semblerait que les positions relatives de certaines transitions mixtes varient suivant la boîte étudiée. Ces résultats sont corroborés par les mesures d'excitation de la photoluminescence ⁸ réalisée par C. Kammerer [16], et par la spectroscopie de photocourant menée par R. Oulton [17, 18]. Cette dernière technique nécessite que la boîte quantique soit insérée dans une structure électrique. Nous la décrirons en détail dans le chapitre suivant.

Comme on le verra par la suite, les transitions mixtes auront pour nous une grande importance, pour orienter optiquement le spin des porteurs.

États excitoniques d'une boîte quantique et règles de sélection optique

L'excitation optique conduit à l'injection d'une paire électron/trou dans la boîte quantique. Le confinement extrême des porteurs (plusieurs centaines de meV [19]) est bien plus grand que l'interaction coulombienne, de l'ordre quelques dizaines de meV [15]. La paire électron/trou est dite faiblement corrélée, et ceci permet avantagement de conserver la vision "à une particule" des états quantiques 1.7. En toute rigueur, nous ne pouvons pas appeler la paire électron/trou "exciton", car c'est bien le confinement qui assure, en premier lieu, la cohésion du système à deux particules dans la boîte. Cependant on conservera la terminologie d'exciton pour qualifier les états de paires électron/trou.

⁸les spectres de PLE ne donne pas directement *stricto sensu* le spectre d'absorption, puisque l'intensité de PLE dépend en plus de la relaxation entre l'état excité par le laser et celui dont on regarde la recombinaison radiative.

Du fait de la discrétisation totale des états électroniques, la notion de trou [20] possède sans doute un caractère encore plus fort pour les boîtes quantiques. Notamment la promotion de l'électron de l'état de valence $|S_v\rangle$ vers l'état excité de conduction $|S_c\rangle$ (excitation résonnante) laisse, dans l'espace réel, un trou dans la bande de valence clairement identifié par le fait que l'état $|S_v\rangle$ n'est plus occupé que par un seul électron. Ainsi, dans ce manuscrit nous adopterons les termes spécifiques à la pseudo-particule de trou. L'état de valence vacant $|S_v\rangle \otimes |3/2, +3/2\rangle$ sera noté $|S_h, \downarrow\rangle$ avec un pseudo-spin $J_z^h = -3/2$, de même $|S_v\rangle \otimes |3/2, -3/2\rangle$ est équivalent à $|S_h, \uparrow\rangle$ de pseudo-spin $+3/2$.

Les états excitoniques ⁹ de la boîte quantique sont construits à partir des états quantiques à une particule : $|S_e, \uparrow\rangle$, $|S_e, \downarrow\rangle$, $|S_h, \uparrow\rangle$ et $|S_h, \downarrow\rangle$. En utilisant les lois de composition du moment cinétique [21], on peut former, a priori, quatre états excitoniques dégénérés : les états dont $J_z = J_z^e + J_z^h = \pm 1$ qu'on nomme les excitons brillants $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$, puis ceux dont $J_z = \pm 2$, les excitons noirs $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$. Les qualificatifs "brillant" indiquent les états tels que $|J_z| = 1$ pouvant se coupler à la lumière et et "noir" ceux dont $|J_z| = 2$ qui ne peuvent pas être créés optiquement et émettre de photons.

Les règles de sélection optique pour les boîtes quantiques se déduisent de la même façon que celles vues pour la couche de mouillage à la section précédente. On peut donc les illustrer par le schéma 1.9 en terme de transitions excitoniques .

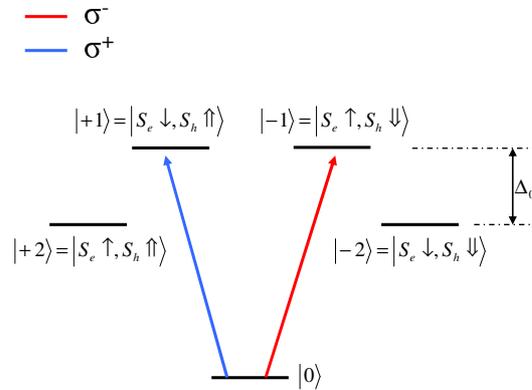


FIG. 1.9: Règles de sélection optique d'une boîte quantique à symétrie de révolution.

Le confinement exalte les interactions d'échange électron/trou. Pour une boîte à symétrie de révolution, ce terme d'échange est responsable de la levée de dégénérescence excitons noir et brillant (*c.f* figure 1.9) . Les excitons noirs, de plus basse énergie, sont donc les états fondamentaux de la boîte. Le splitting noir/brillant Δ_0 est de l'ordre de 0.5 meV [22]. Cependant, la brisure de la symétrie de révolution va complètement changer les conclusions

⁹ou états de paires électron/trou...

qu'on pouvait tirer à partir du schéma 1.9 : les états propres optiquement actifs de la boîte quantique ne seront plus polarisés circulairement.

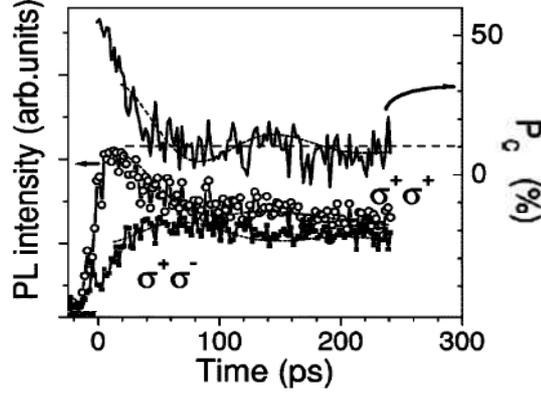


FIG. 1.10: Photoluminescence résolue en polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes. L'excitation est polarisée circulairement à 1 LO de la transition fondamentale (quasi-résonnant).

Nous pouvons d'ores et déjà donner une signature expérimentale de ce qui vient d'être énoncé. L'expérience réalisée dans le groupe de X. Marie [23] consiste en l'excitation quasi-résonnante d'un ensemble de boîtes quantique, en polarisation circulaire σ^+ . La polarisation de la luminescence suivie temporellement (voir résultat 1.10) montre des oscillations de période ~ 140 ps. Ces battements quantiques prouvent que l'état brillant $J_z = +1$, initialement préparé par l'impulsion optique, n'est pas état stationnaire de la boîte.

Nous allons maintenant donner les éléments de compréhension, dans la section suivante.

1.3 Structure fine excitonique et conséquences

Nous avons déjà mentionné que le confinement extrême des porteurs renforce considérablement l'interaction d'échange électron/trou. L'intégrale d'échange s'écrit alors :

$$E_{exc.} = \frac{1}{4\pi\epsilon} \int \int d^3\vec{r}_1 d^3\vec{r}_2 \frac{\Psi_{X^0}^*(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2) \Psi_{X^0}(\vec{r}_e = \vec{r}_2, \vec{r}_h = \vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (1.19)$$

où Ψ_{X^0} est la fonction d'onde de l'exciton noté X^0 , et $\vec{r}_{e/h}$ sont respectivement les positions de l'électron et du trou [22]. La symétrie du confinement peut modifier la fonction d'onde excitonique et remet alors en cause la description que nous avons détaillé concernant une boîte à symétrie de révolution. La réduction de symétrie va alors conduire à une structure fine excitonique via l'interaction d'échange électron/trou, dont la conséquence principale est une levée de dégénérescence des états brillants ¹⁰.

¹⁰La réduction de symétrie lève la dégénérescence des états P_e d'environ 5 meV. Ceci a été confirmé par des mesures d'absorption intrabandes sur un ensemble de boîtes dopées à un électron [24], par l'équipe de Y. Guldner.

1.3.1 Structure fine de l'exciton neutre

Le calcul des termes d'échange se sépare en deux : le terme dit "à courte portée" (*c.p*) qui quantifie l'interaction d'échange lorsque l'électron et le trou sont dans la même cellule unité (il est alors fortement lié à la symétrie à l'échelle atomique), puis le terme "à longue portée" (*l.p*). Ce dernier introduit l'effet de réduction de symétrie du potentiel de confinement sur des fonctions enveloppes électrou/trou, qui perdent alors partiellement la symétrie S.

Bir et Pikus ont montré en utilisant des considérations sur la théorie des groupes [25], que l'expression générale de l'échange électron/trou est donnée par :

$$\hat{H}_{exc.} = - \sum_{i \in x,y,z} \left(a_i \hat{J}_h^i + b_i (\hat{J}_h^i)^3 \right) \cdot \hat{\sigma}_e^i \quad (1.20)$$

où les \hat{J}_h^i sont les opérateurs du moment angulaire associé au pseudo-spin du trou 3/2 et $\hat{\sigma}_e^i$ les matrices de Pauli du spin 1/2. En toute rigueur l'expression 1.20 est valide pour les contributions courtes portées, néanmoins M. Bayer montre [22] qu'on peut inclure les contributions longues portées en gardant ce même formalisme.

Dans la base excitonique $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle$ et $|-2\rangle$, l'hamiltonien d'échange s'écrit :

$$\hat{H}_{exc.} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \Delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & -\delta_2 & -\Delta_0 \end{bmatrix} \quad (1.21)$$

où $\Delta_0 = \delta_0^{c.p} + \delta_0^{l.p}$ et $\delta_1 = \delta_1^{c.p} + \delta_1^{l.p}$ avec $\delta_0^{c.p} = 1.5(a_z + 2.25b_z)$, $\delta_1^{c.p} = 0.75(b_x - b_y)$, $\delta_2 = 0.75(b_x + b_y)$ et $\delta_1^{l.p} = \gamma_x - \gamma_y$.

Les termes hors-diagonaux nous incitent grandement à reconsidérer les états excitoniques de la boîte, comme sur la figure 1.11.

La levée de dégénérescence pour les excitons brillants δ_1 se nomme couramment le splitting d'échange anisotrope électron/trou. Les états brillants sont alors couplés à la lumière polarisée *linéairement*, suivant les direction $[1\ 1\ 0]$ et $[1\ \bar{1}\ 0]$. Les oscillations de la polarisation circulaire de l'expérience 1.10 sont donc directement reliées à δ_1 par $\tau = h/\delta_1$, ce qui donne un splitting d'échange anisotrope pour cet ensemble de boîtes de l'ordre de $30\ \mu eV$.

Comme il est communément admis que les effets à longue portée sont dominants quant à la valeur de δ_1 (*i.e* $\delta_1^{l.p} \gg \delta_1^{c.p}$)¹¹, nous pouvons brièvement exposer les causes d'une réduction de symétrie de la boîte quantique et ayant des conséquences sur la fonction enveloppe (effet sur les termes d'échange longue portée) :

- Les boîtes quantiques possèdent généralement une anisotropie de forme : la base des boîtes est allongée suivant une direction cristallographique, formant une ellipse dont les axes principaux sont suivant $[1\ 1\ 0]$ et $[1\ \bar{1}\ 0]$.

¹¹les effets à courte portée contribuent majoritairement à la levée de dégénérescence des états noirs et brillants ($\delta_0^{c.p} \gg \delta_0^{l.p}$)

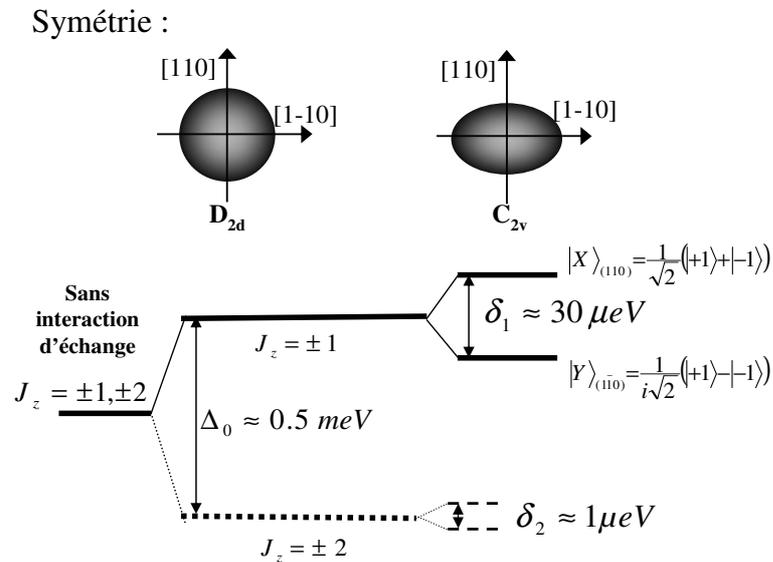


FIG. 1.11: Evolution de la structure fine excitonique avec la symétrie de la boîte quantique.

- L'inhomogénéité de composition due à l'interdiffusion du gallium conduit alors à une asymétrie des contraintes localisées aux interfaces de la boîte quantique, pouvant déformer les fonctions enveloppes de l'électron et du trou [26].

Une très belle illustration de l'échange anisotrope est donnée par une expérience d'absorption sur boîte quantique unique (*c.f.* 1.12a), réalisée par A. Hogele [27].

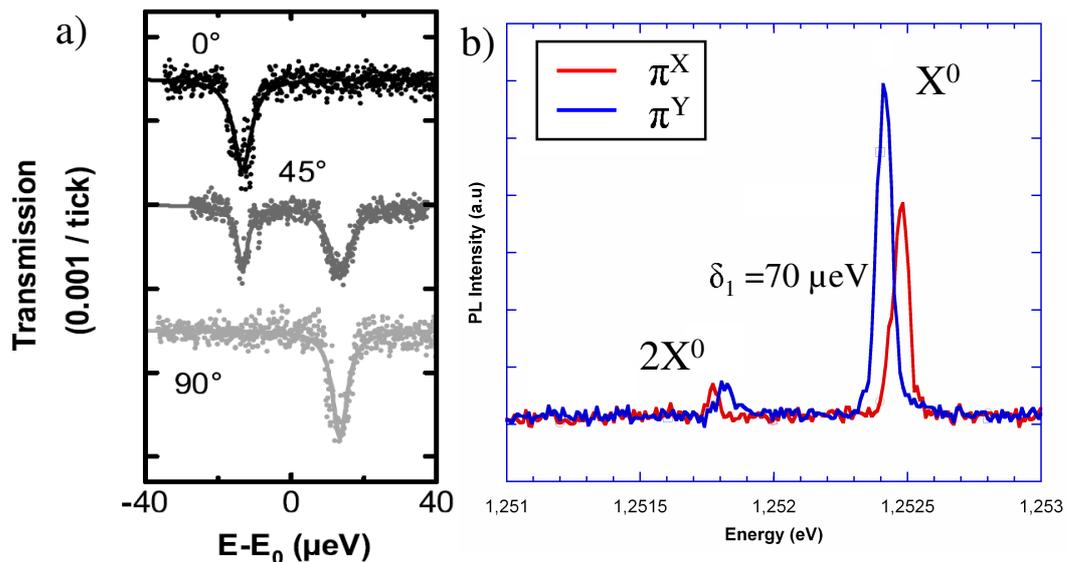


FIG. 1.12: a) Spectres de transmission d'une boîte quantique unique en fonction de la polarisation linéaire du laser. b) Spectres de luminescence analysés en polarisation linéaire.

Quand la polarisation linéaire du laser est selon les directions $X = [1\ 1\ 0]$ et $Y = [1\ \bar{1}\ 0]$, on ne voit qu'une seule raie d'absorption ; suivant l'état de polarisation linéaire de la lumière, l'absorption est décalée de $\delta_1 \sim 30\ \mu\text{eV}$. Lorsque la polarisation linéaire est à 45° des axes propres, les deux raies d'absorption sont observées simultanément. De plus la présence de la structure fine est couramment observée en spectroscopie de luminescence de boîtes quantiques uniques, comme le montre la figure 1.12b. L'analyse de la polarisation linéaire de la luminescence suivant les axes X et Y fait clairement apparaître le splitting d'échange anisotrope. Il est pour cette boîte d'environ $70\ \mu\text{eV}$. La valeur de δ_1 peut bien sûr varier d'une boîte à l'autre ; pour nos échantillons, elle varie de quelques μeV à une centaine de μeV . Ces résultats montrés soit en absorption, soit en émission, montrent clairement que les états excitoniques brillants sont couplés au champ lumineux polarisé linéairement.

Sur le spectre de luminescence 1.12b, nous voyons à environ $1\ \text{meV}$ en dessous de l'exciton

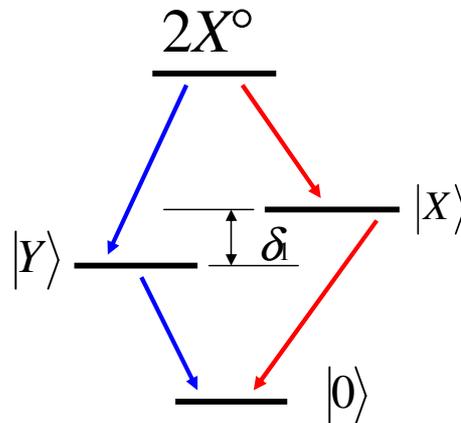


FIG. 1.13: Cascade radiative du biexciton, montrant la corrélation de polarisation due aux règles de conservation du moment angulaire.

neutre une raie, moins intense, possédant aussi une structure fine, mais dont les composantes X et Y sont inversées par rapport à l'exciton neutre : il s'agit alors de la luminescence du biexciton de la même boîte quantique (deux paires électron/trou). En accord avec le schéma 1.13 qui illustre la cascade radiative associée au biexciton, il est alors aisé de comprendre le renversement caractéristique des composantes polarisées linéairement. Ceci constitue une aide précieuse pour l'identification des raies de luminescence.

1.3.2 Orientation optique des porteurs dans la boîte quantique

L'échange anisotrope électron/trou a pour conséquence de moyenniser à zéro le spin de l'exciton, photocréé par une excitation polarisée circulairement, en un temps typique $\hbar/\delta_1 \sim 50\ \text{ps}$, comme le révèle l'expérience 1.10. La vision classique est de décrire ceci, en considérant une précession simultanée des spins des deux particules dans un champ magnétique transverse,

associé au terme d'échange.

1.3.2.1 Influence d'un champ magnétique longitudinal

Nous allons voir ici qu'un champ magnétique longitudinal peut "restaurer" la symétrie de la boîte quantique. Nous limiterons l'étude au sous-espace des états brillants.

En présence d'un champ magnétique longitudinal, l'hamiltonien qui décrit les états excitoniques brillants devient alors :

$$\hat{H}_b = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \Delta_0 + \delta_z & \delta_1 \\ \delta_1 & \Delta_0 - \delta_z \end{bmatrix} \quad (1.22)$$

où $\delta_z = g_X \mu_B B_z$. La figure 1.14 montre le spectre d'énergie en fonction du champ magnétique.

Les états brillants de la boîte quantique s'exprime alors dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle\}$:

$$|EL_1\rangle = \alpha_+^{B_z} \left(|+1\rangle + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} + \sqrt{1 + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1}\right)^2} \right) |-1\rangle \right) \text{ pour la branche haute énergie et}$$

$|EL_2\rangle = \alpha_-^{B_z} \left(|+1\rangle + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1} - \sqrt{1 + \left(\frac{\delta_z}{\delta_1}\right)^2} \right) |-1\rangle \right)$ pour la branche basse énergie, où $\alpha_{+/-}$ sont des constantes de normalisation dépendant du champ magnétique.

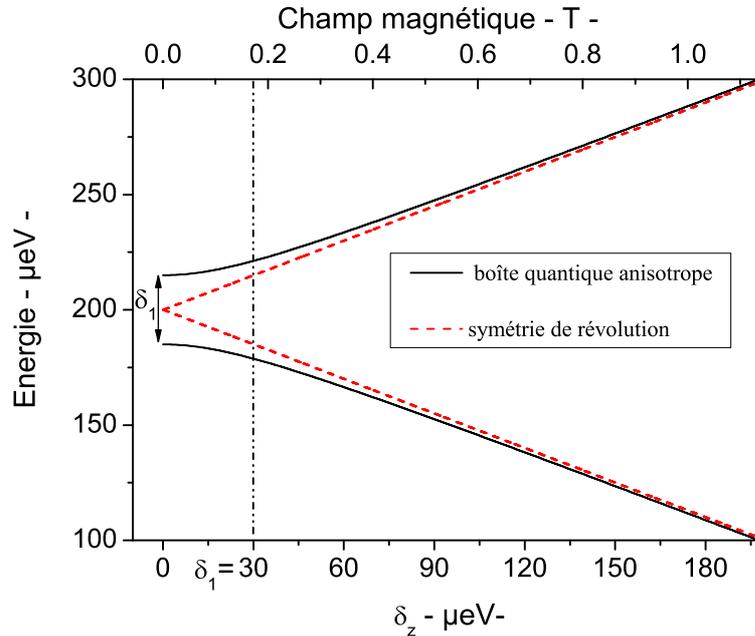


FIG. 1.14: Evolution du spectre excitonique en fonction du champ magnétique longitudinal. Pour la modélisation $\delta_1 = 30 \mu eV$ et $g_X = 3$ [22]

Dans la limite où $\delta_z \gg \delta_1$, les états elliptiques $|EL_1\rangle$ et $|EL_2\rangle$ tendent respectivement vers les états circulaires $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$. Autrement dit, l'orientation optique de l'exciton nécessite un champ magnétique longitudinal supérieur au Tesla.

L'orientation optique de l'exciton en fort champ magnétique a été utilisé par M. Kroutvar *et al.* [28] pour préparer l'électron sur le niveau fondamental de conduction d'une boîte quantique unique, dans un état de spin donné. Dans cette expérience, les boîtes quantique sont insérées dans une structure p-i-Schottky permettant de contrôler l'échappement du trou hors de la boîte, par un champ électrique. A l'instant $t = 0$, l'excitation polarisée circulairement crée la paire électron/trou confinée dans la boîte, puis une impulsion électrique permet au trou de quitter la boîte. Le système se réduit alors à un électron préparé dans un état de spin par l'orientation optique, sur le sous niveau Zeeman de conduction. Après un temps de capture de l'électron dans la boîte Δt , une autre impulsion électrique recharge la boîte avec un trou autorisant la recombinaison radiative. La polarisation circulaire de l'électroluminescence permet alors de sonder les mécanismes de relaxation du spin électronique entre les sous niveaux Zeeman. Ils ont ainsi pu mesurer un temps de relaxation du spin électronique entre les deux sous niveaux de 20 ms pour un champ de 4 Tesla.

Cette expérience illustre les difficultés techniques afin de préparer le spin de l'électron confiné dans la boîte quantique et la nécessité d'utiliser de forts champ magnétique, pour écranter le champ d'échange anisotrope. Ce protocole permet alors l'étude de la relaxation du spin uniquement dans des régimes de forts champs magnétiques, et de fait l'interdit en champ nul.

1.3.2.2 Luminescence des trions

Le protocole que nous avons utilisé permet d'"écrire" optiquement le spin de l'électron et du trou sans utiliser de champ magnétique. Il consiste à former dans la boîte quantique un complexe excitonique chargé une fois - trion - afin de bloquer l'échange électron/trou. On s'intéressa dorénavant à la luminescence des trions.

Le trion positif noté X^+ est constitué de deux trous appariés de spins antiparallèles sur le niveau fondamental de valence $|S_h\rangle$ et d'un électron sur le niveau $|S_e\rangle$. Cette configuration de spin annule les termes d'échange électron/trou deux à deux. L'état fondamentale du trion $X^+ = |S_e; S_h \uparrow, S_h \downarrow\rangle$ est dégénéré en spin en raison des deux orientations possibles du spin électronique. La polarisation circulaire de la luminescence est donc directement liée à l'état de spin du porteur non apparié, ici l'électron. Il en sera de même avec le trion négatif $X^- = |S_e \uparrow, S_e \downarrow; S_h\rangle$ composé de deux électrons appariés et d'un trou, dont la polarisation circulaire de luminescence sonde l'état du spin du trou.

Par exemple, une polarisation circulaire forte associée à X^- indiquerait que la recombinaison radiative a laissé un électron de spin orienté dans l'état opposé à celui qui a contribué à la luminescence. Ceci montre qu' aussi bien l'état initial que l'état final sont à considérer pour orienter en spin les porteurs.

L'étude des trions demande de charger électriquement les boîtes avec un porteur unique. L'injection optique d'une paire électron/trou forme ainsi dans la boîte chargée un état trion. Pour cela plusieurs méthodes existent.

- (i) Dopage chimique : un plan de dopage se situant à quelques dizaines d'Angstrom en dessous du plan de boîtes.

Si la concentration surfacique de dopage est proche de celle des boîtes, alors on peut espérer doper les boîtes avec un porteur. Cependant le transfert de charge du dopant vers les boîtes n'étant jamais de un pour un, on a alors affaire à une distribution de boîtes chargées à 0, 1 ou 2 porteurs.

- (ii) Dopage commandé électriquement.

Cette méthode consiste à insérer le plan de boîtes dans une structure Schottky, où la tension de grille permet de contrôler le transfert tunnel entre le contact arrière fortement dopé et les boîtes. Cette procédure permet, d'une part de contrôler exactement le nombre de dopants, et d'autre part de travailler sur boîte unique.

Le dispositif à contrôle électrique de la charge est l'une des pierres angulaires de ce travail de thèse. Nous allons détailler dans le chapitre suivant ses caractéristiques électriques, et les effets de "chargement" observés en spectroscopie optique.

Bibliographie

- [1] Ivan Favero. *Décohérence, Symétries et Relaxation de Spin Dans Les Boîtes Quantiques de Semiconducteurs*. PhD thesis, ENS Ulm, 2005.
- [2] F.J Grunthaler, M.Y. Yen, R. Fernandez, T.C. Lee, A. Madhukar, and B.F. Lewis. Molecular beam epitaxial growth of GaAs/InAs multiple interface structures. *Appl. Phys. Lett.*, 46(983), 1985.
- [3] Y. Nabetani, T. Ishikawa, S. Noda, and A. Sasaki. Initial growth stage and optical properties of a three dimensional InAs structure on GaAs. *Journal of Appl. Phys.*, 76(347), 1994.
- [4] H. Lee, R. Lowe-Webb, W. Yang, and P.C. Sercel. Determination of the shape of self-organized InAs/GaAs quantum dots by reflection high energy electron diffraction. *Appl. Phys. Lett.*, 72(812), 1998.
- [5] Y. Hasewaga, H. Kiyama, Q.K. Xue, and T. Sakurai. InAs/GaAs(001) quantum dots close to thermodynamic equilibrium. *Appl. Phys. Lett.*, 72(2265), 1998.
- [6] J.M. Gérard, J.Y. Marzin, G. Zimmerman, A. Ponchet, O. Cabrol, D. Barrier, B. Jusserand, and B. Sermage. *Sol. Stat. Electroniques*, 40(807), 1996.
- [7] P.W. Fry, I.E. Itskevitch, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, J.J. Finley, J.A. Barker, E.P. O'Reilly, L.R. Wilson, I.A. Lerkin, P.A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J.P.R. David, A.G. Cullis, G. Hill, and J.C. Clark. Inverted electron-hole alignment in InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 84(4), 2000.
- [8] A. Badolato et Al. Deterministic coupling of single QDs to single nanocavity modes. *Science*, 308 :1158, 2005.
- [9] G. Bastard. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*.
- [10] Luttinger and Kohn. Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields. *Phys. Rev.*, 97(4), 1955.
- [11] F. Meier and B. Zakharchenya, editors. *Optical Orientation*, volume 8. North-Holland, 1984.
- [12] P.M. Koenraad et Al. Composition profiling at the atomic scale in III-V nanostructures by cross sectional STM. *Physica E*, 17(526), 2003.
- [13] O. Brandt et Al. Heavy- and light hole character of optical transitions in InAs/GaAs single monolayer quantum wells. *Phys. Rev. B*, 45(4217), 1991.

- [14] T.C. Damen et Al. Subpicosecond spin relaxation dynamics of excitons and free carriers in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 67(24), 1991.
- [15] Angela Vasanelli. *Transitions Optiques Interbandes et Intrabandes Dans la Boîte Quantique Simple et Couplées Verticalement*. PhD thesis, ENS Ulm, 2002.
- [16] C. Kammerer. *Spectroscopie Optique Des Boîtes Quantiques Uniques : Effets de L'environnement*. PhD thesis, ENS Ulm, 2002.
- [17] R. Oulton, J.J. Finley, A.I. Tatarovskii, M.S. Skolnick, A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled stranski-Krastanov quantum dots. *Phys. Rev. B*, 68(235301), 2003.
- [18] R. Oulton, A.I. Tartakovski, A. Ebbens, J. Cahill, J.J. Finley, D.J. Mowbray, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson. Temperature-induced carrier escape processes studied in absorption of individual InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 69(155323), 2004.
- [19] Aleksander Jankovic. *Etats Électroniques Des Boîtes Quantiques de Semiconducteurs : Rôle de L'environnement et Couplage Dépendant Du Spin*. PhD thesis, ENS Ulm, 2004.
- [20] N. Ashcroft and N. Mermin. *Physiques Des Solides*. EDP Sciences.
- [21] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1973.
- [22] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, and A. Forchel. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 65(195315), 2002.
- [23] M. Sénès, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, J. Tribollet, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, and J.M. Gérard. Exciton spin manipulation in InAs/GaAs quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects. *Phys. Rev. B*, 71(115334), 2005.
- [24] S. Hameau, J.N. Isaia, Y. Guldner, E. Delporte, O. Verzele, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, and J.M. Gérard. Far-infrared magnetoscopy of polaron states in self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65(085316), 2002.
- [25] G.E. Pikus and G.L. Bir. *Sov. Phys. JETP*, 33(108), 1971.
- [26] G. Bester et Al. Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry : Atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects. *Phys. Rev. B*, 71(045318), 2005.
- [27] A. Hoge, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R.J. Warburton, B.D. Gerardot, and P.M. Petroff. Voltage-controlled optics of a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 93(21), 2004.
- [28] M. Kroutvar et Al. Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. *Nature*, 432(03008), 2004.

Chapitre 2

Dispositif pour contrôler la charge des boîtes quantiques

Sommaire

2.1	Diodes Schottky	32
2.1.1	Principes	32
2.1.2	Etapes technologiques	33
2.1.3	Caractéristiques électriques	36
2.1.4	Effet du champ électrique sur la luminescence	40
2.2	Effets de chargements sur boîtes quantiques uniques	43
2.2.1	Montage de micro-photoluminescence	43
2.2.2	Echantillon n-i-Schottky	44
2.2.3	Echantillon p-i-Schottky	49
2.3	Structures fines des excitons multichargés	50
2.3.1	Exciton doublement chargé X^{2-} et X^{2+}	50
2.3.2	Biexcitons chargés $2X^-$ et $2X^+$	52
2.4	Bilan	55

Nous allons aborder maintenant la description du dispositif servant à contrôler la charge dans les boîtes quantiques. Dans ce chapitre, nous verrons les propriétés électriques de tels échantillons et les spectres de luminescence confirmant de manière claire les effets de chargement. Nous avons étudié deux types d'échantillons, l'un pouvant contrôler le nombre de trous, et l'autre le nombre d'électrons. Le développement de ce dernier doit énormément aux travaux de thèse de Sabine Laurent, conseillée par Aristide Lemaître, qui ensemble ont établi une procédure technologique fiable et reproductible au LPN.

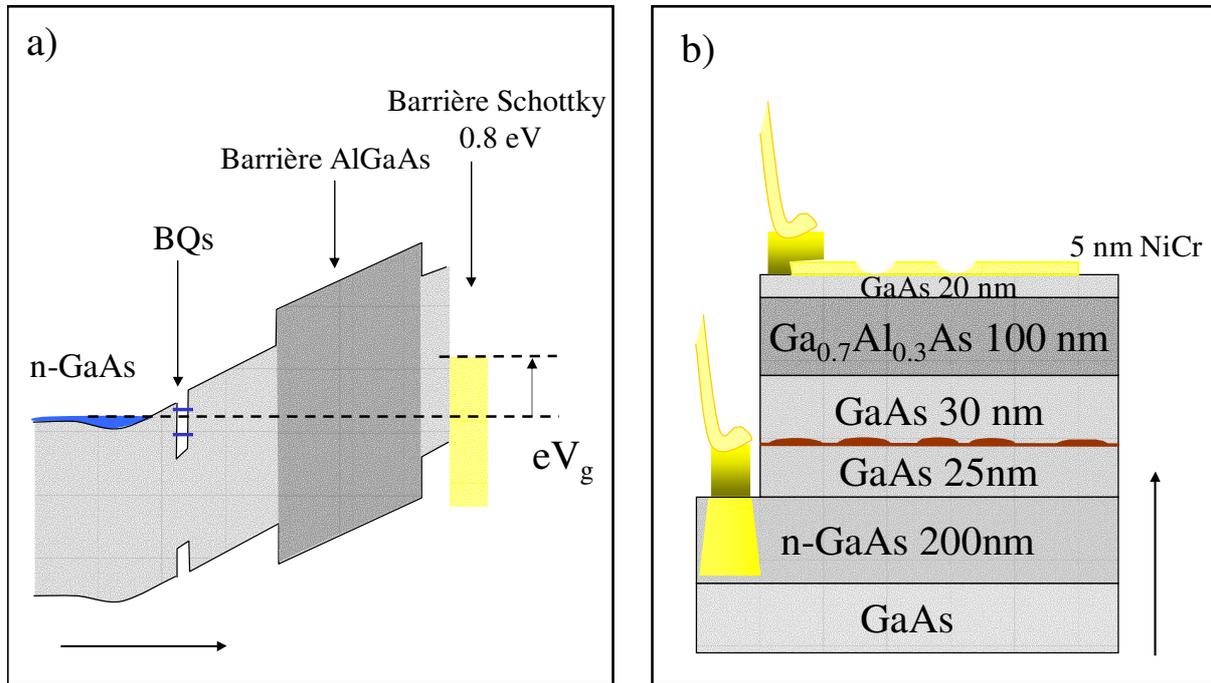


FIG. 2.1: a) Structure de bande de la diode n-i-Schottky. b) Echantillon après les différentes étapes technologiques. Les flèches indiquent la direction de croissance.

2.1 Diodes Schottky

2.1.1 Principes

Les premières diodes Schottky incluant des boîtes quantiques furent développées dans l'équipe de P.M Petroff [1] afin de déterminer, par spectroscopie de la capacité électrique, les niveaux électroniques des états confinés dans les boîtes quantiques. Le principe consiste à appliquer une tension de grille pour mettre en résonance le niveau confiné de la boîte quantique avec le potentiel chimique de l'électrode dopée, qui fait office de contact arrière de la diode Schottky. Un schéma de structure de bande d'une telle diode est représenté sur la figure 2.1a. Le dispositif permettant le contrôle de l'occupation des trous possède une structure identique, hormis le contact arrière qui est dopé p. Leur fonctionnement est donc tout à fait similaire et dans la suite nous nous limiterons à décrire le fonctionnement des diodes de type n.

Le contact métal-semiconducteur (où contact Schottky) provoque un transfert de charge du semiconducteur vers le métal afin d'égaliser spatialement les potentiels chimiques. La distribution de cette charge ainsi que les énergies d'ionisation du métal et du semiconducteur déterminent la hauteur de la barrière Schottky. Pour les matériaux employés ici (métal= $Ni_{0.5}Cr_{0.5}$ et semiconducteur = GaAs) le niveau de Fermi du métal se positionne à peu près à la moitié

du gap de GaAs donnant une hauteur de barrière d'environ 0.8 eV.¹ L'épaisseur de la zone de charge d'espace ainsi créée est donnée par $\sqrt{2\varepsilon V_B/eN}$ où V_B est la hauteur de barrière Schottky et N la densité de charge dans la zone désertée du semiconducteur. Elle est de l'ordre du μm pour le dopage résiduel des couches épitaxiées de sorte que le champ électrique est essentiellement constant jusqu'au contact n de la structure. Celui-ci est constitué d'une couche de GaAs fortement dopé et déposé à 25 nm sous le plan de boîtes. La réalisation d'un contact sur cette couche nécessite plusieurs étapes technologiques, que nous décrirons plus loin. Du fait de la très forte densité de dopage (GaAs dopé à 10^{18} cm^{-3}), la longueur de déplétion de cette couche pour se raccorder au champ électrique produit par la barrière Schottky est très faible de l'ordre de quelques nm. On peut donc considérer que le champ électrique au niveau du plan de boîte est uniquement imposé par le contact métal/semiconducteur et l'épaisseur de semiconducteur intrinsèque, comme représenté sur la figure 2.1

La barrière d'AlGaAs assure un couplage capacitif entre le plan de boîte et le contact Schottky et limite l'injection de courant lorsque le champ diminue. Seul le contact arrière et les boîtes sont ainsi couplés par effet tunnel. En appliquant une tension entre la grille Schottky et le contact arrière, on peut alors modifier les positions relatives du potentiel chimique du réservoir d'électrons (la couche n-GaAs) et des niveaux quantifiés de conduction dans les boîtes, permettant ainsi le chargement de ces niveaux par un transfert tunnel résonnant.

2.1.2 Etapes technologiques

Pour réaliser ce genre d'échantillon, on peut distinguer deux étapes technologiques principales :

- (i) Contact "arrière" de l'électrode dopée n. Comme celui-ci nécessite un recuit à une température de 400°C, il est préférable de commencer par cette étape, pour ne pas altérer la grille Schottky de très faible épaisseur.
- (ii) Face avant : évaporation de la grille Schottky semi-transparente, puis dépôt d'un masque optique nécessaire pour sélectionner spatialement un nombre réduit de boîtes quantiques.

2.1.2.1 Reprise du contact arrière

Le contact arrière est enterré à environ 200 nm sous la surface de l'échantillon. La première phase consiste à dessiner en lithographie UV négative un quadrillage (*c.f.* figure 2.3) afin de localiser la reprise de contact pour ne pas risquer de provoquer un court-circuit avec le contact face avant.

Ensuite la gravure humide par une solution $H_3PO_4 : 3/H_2O_2 : 1/H_2O : 40$ permet d'atteindre la zone fortement dopée. Ce procédé de gravure fait intervenir un processus d'oxydation réalisé par H_2O_2 qui oxyde la surface du semiconducteur. Cette couche oxydée est ensuite attaquée par

¹Il est possible de déposer aussi une couche Ti/Au : 50/100 Å. La hauteur de la Barrière Schottky n'est que très faiblement affectée du fait de la très forte densité d'électrons libres dans les métaux $10^{22-23} \text{ cm}^{-3}$, quasiment identique pour l'or et le $Ni_{0.5}Cr_{0.5}$.

l'acide [2]. L'eau joue le rôle de solvant et permet de contrôler la cinétique de gravure. Pour la solution employée, elle est typiquement de 1000 Å/mn.

La dernière phase consiste à faire diffuser une "couche tampon dopé n++" à l'endroit gravé, de Ni 100 Å, Ge 600 Å, Au 1200 Å, Ni 200 Å, Au 2000 Å. Lors du recuit, il se forme un eutectique Or-Germanium², dont la température de fusion est 361°. Le germanium joue le rôle de dopant à l'interface contact ohmique/semiconducteur. Le recuit rapide (40s) à une température de $\sim 400^\circ\text{C}$ ($> T_F$) permet d'une part de former l'eutectique AuGe et d'autre part de le faire diffuser dans le GaAs dopé n. La longueur de diffusion est typiquement de l'ordre de 1000 Å[3], c'est pourquoi la gravure n'a pas besoin d'être très précise. Il résulte de ce surdopage local n++ (représenté sur la figure 2.1a) une augmentation des probabilités de franchissement des barrières par effet tunnel, favorable à l'obtention d'un contact faiblement résistif³, comme le montrent les schémas 2.2.

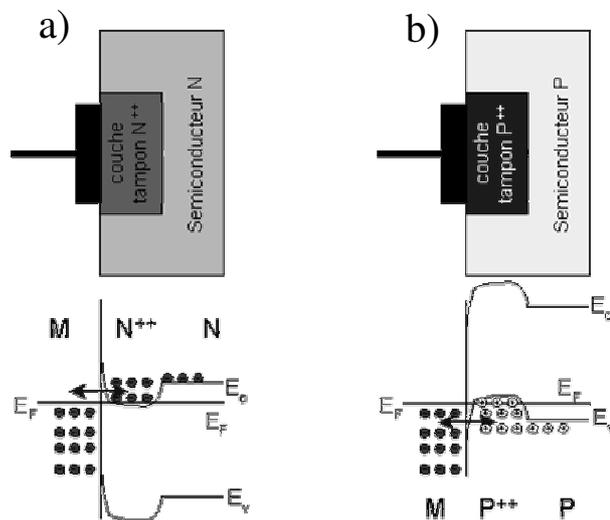


FIG. 2.2: a) Structure de bande d'un contact ohmique métal/semiconducteur dopé type n. b) type p

Pour les échantillons p-i-Schottky nous ne bénéficions malheureusement, pas de contact ohmique diffusif de type p⁴. Nous avons alors décidé simplement de déposer à l'endroit gravé, une couche de Ti :200 Å/Au :2000 Å réalisant un contact Schottky dont la très faible épaisseur de déplétion (en raison du dopage p à 10^{19} cm^{-3}) permet un transport tunnel très efficace.

²avec un rapport massique 88% en or et 12% en Ge

³typiquement, on obtient ainsi des résistances de contact de l'ordre de $10^{-7} \Omega \cdot \text{cm}^{-2}$ pour du GaAs dopé n à 10^{18} cm^{-3} .

⁴Il existe pourtant l'eutectique ZnAu pour les contacts p, qui a l'avantage d'avoir une température de fusion de 200°C .

2.1.2.2 Process de la face avant

Une fois la reprise de contact de la zone dopée terminée, il suffit juste d'évaporer une épaisseur de 5 nm de NiCr faisant office de grille Schottky (*c.f.* image 2.3a) tout en restant semi-transparente aux longueurs d'onde voisine du μm . La taille des plus grandes surfaces actives définies par le masque que nous avons utilisé est de $300 \mu m$ de côté. En fait, une couche aussi fine ne supporterait pas la micro-soudure par thermo-compression (ou "bonding") nécessaire pour se raccorder à une source de tension. C'est pourquoi nous évaporons une deuxième couche plus épaisse de Ti : 300 \AA /Au : 3000 \AA qui sert de report de contact, suffisamment solide pour résister à l'opération de bonding.

Par la suite, nous étudierons deux types d'échantillons : ceux possédant une forte densité de boîtes quantiques et ceux qui ont été fabriqués sur la zone frontière (*c.f.* Chap. 1). Pour les premiers, il n'y a pas nécessité de recourir à une sélection spatiale du nombre de boîtes. Dans ce cas, le report de contact est simplement décalé par rapport à la grille Schottky, laissant un champ de quelques dizaines de μm pour l'excitation laser avec un montage standard de photoluminescence (*c.f.* figure 2.3b).

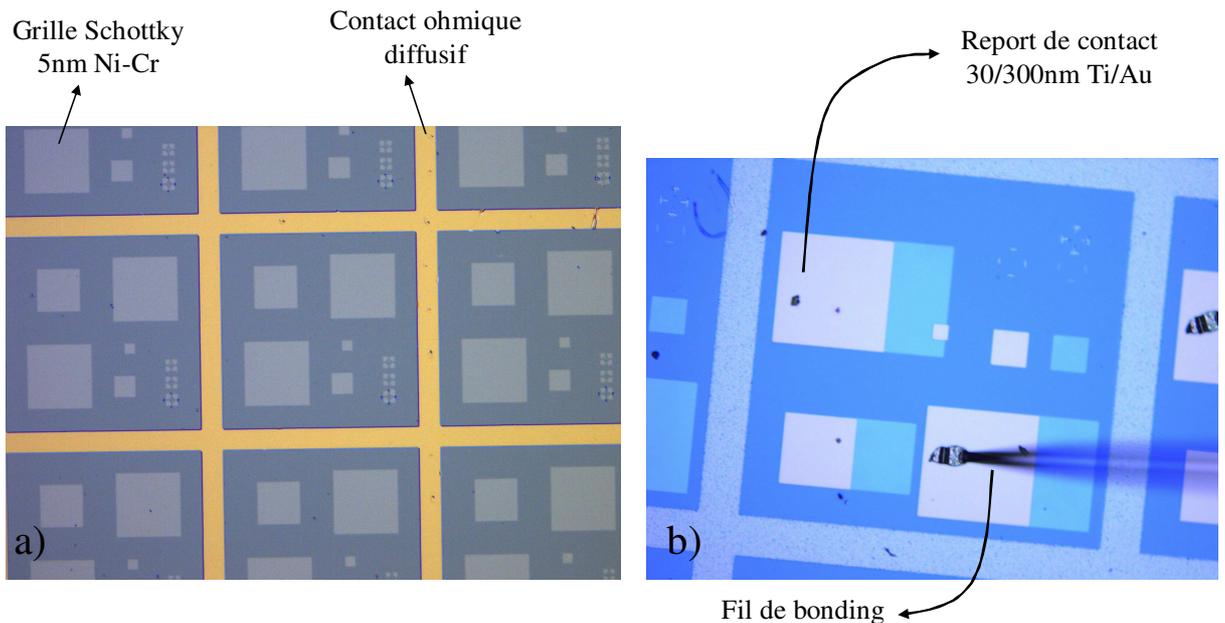


FIG. 2.3: Photos des échantillons après les différentes étapes.

Mais pour les échantillons à faible densité, il est nécessaire de faire une sélection spatiale du nombre de boîtes que l'on va exciter et dont on doit collecter la luminescence. Pour cela, on dépose des micro-billes de latex de diamètre $1 \mu m$ (*c.f.* image MEB 2.4b), avant le dépôt de la couche métallique servant au report de contact. Comme l'épaisseur de ce dernier est plus faible que le rayon des micro-billes, il est possible de les retirer par ultrasons dans un bain de toluène, qui est en principe un solvant efficace pour dissoudre le latex réticulé. Il se forme ainsi des trous

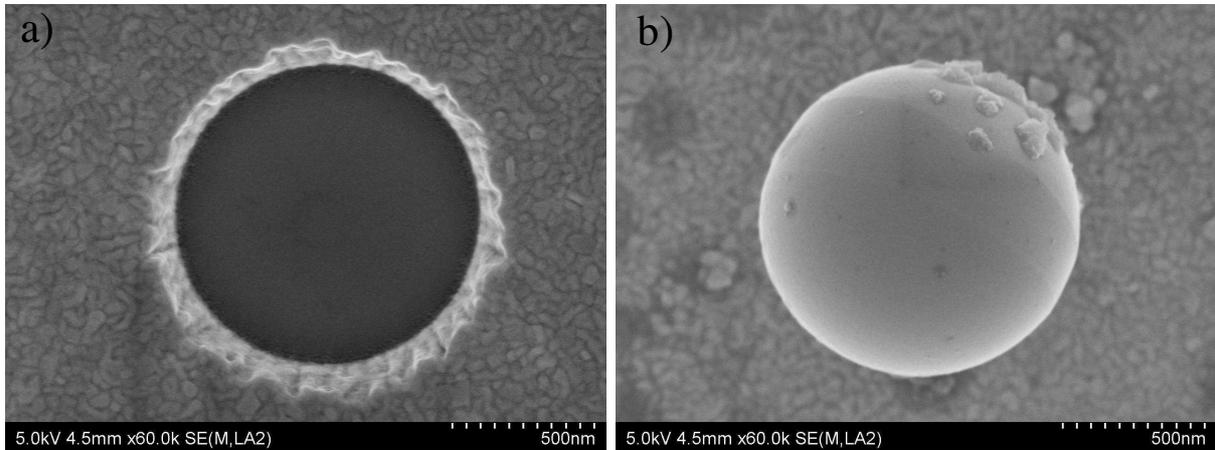


FIG. 2.4: Images MEB réalisées par Luc Le Gratiet au LPN. a) Trou laissé par une microbille de $1 \mu\text{m}$. b) Microbille de latex sur la surface d'or, éjectée du trou par les ultrasons.

circulaires parfaitement définis d'un micron de diamètre sélectionnant ainsi un petit nombre de boîtes (*c.f* image MEB 2.4a).

L'échantillon est maintenant prêt. L'ultime étape consiste à coller l'échantillon sur une embase en céramique avec de la laque d'argent assurant un bon contact thermique, puis de procéder au câblage des diodes par bonding, sur les contacts "macroscopiques" déposés sur la céramique. Il suffit alors de connecter ces derniers aux fils du cryostat, pour les caractérisations électriques et optiques du dispositif.

2.1.3 Caractéristiques électriques

La première mesure électrique, la plus simple, est une mesure $I(V)$. La caractéristique $I = f(V)$ atteste bien du caractère redresseur du dispositif, et confirme que, à basse température, le seuil de la diode est proche de 0.8 V comme attendu (figure 2.5).

En pratique, nous sélectionnons les diodes qui possèdent un courant noir (en polarisation inverse à -1 V), le plus petit possible afin que les courants de fuites ne participent pas au chargement des boîtes. Comme il se doit les caractéristiques $I(V)$ sont inversées pour les échantillons p et n.

Spectroscopie de la capacité $C(V)$

Une première mise en évidence du chargement des boîtes peut être menée par spectroscopie de capacité. Cette technique permet de sonder la densité d'état en mesurant la capacité de l'échantillon, en fonction de la tension de grille. Le plan de boîtes est modélisé comme étant un plan intermédiaire entre les deux armatures du condensateur, portant une charge $-Ne$ où $N = M\langle n \rangle$ (M est le nombre total de boîtes et $\langle n \rangle$ le nombre moyen d'électrons par boîte). La capacité totale

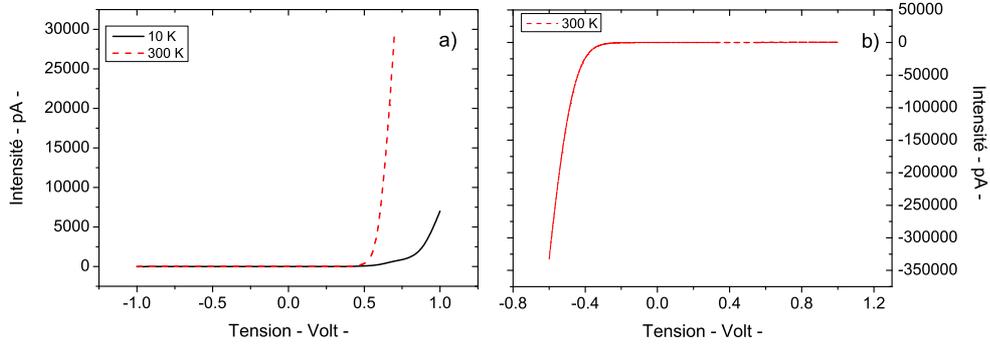


FIG. 2.5: a) Caractéristique I(V) pour un échantillon n-i-Schottky. b) Caractéristique I(V) pour un échantillon p-i-Schottky.

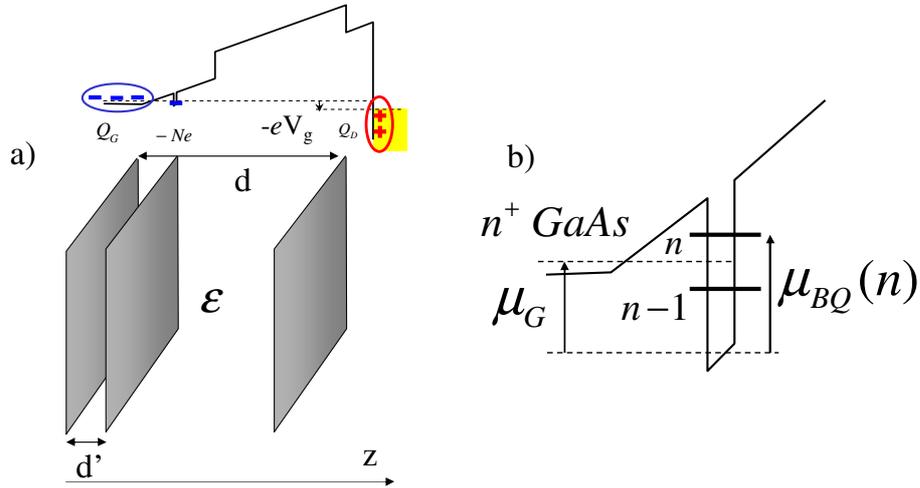


FIG. 2.6: a) Modélisation du chargement des boîtes par un condensateur avec un plan de charge intermédiaire. b) Chargement du n^{ime} électron.

de ce système est définie par $C = -\frac{\partial Q_G}{\partial V}$ ⁵, que l'on peut exprimer par :

$$C = \frac{\epsilon S}{d} - M\alpha e \frac{\partial \langle n \rangle}{\partial V} \quad (2.1)$$

où le rapport des distances $\alpha^{-1} = d/d'$ agit comme un bras de levier sur la tension appliquée à la structure (pour nos échantillons, il est de l'ordre de 7) et $\epsilon S/d = C_0$ est la capacité géométrique en absence du plan intermédiaire de boîtes quantiques.

Cette spectroscopie est effectuée en fonction de la tension V à laquelle on rajoute une tension alternative dans la gamme du kHz et d'amplitude δV (faible devant l'échelle de variation de C). Le courant mesuré en quadrature de phase de cette modulation nous permet d'accéder

⁵ V est la tension appliquée entre les deux armatures de la capacité.

directement à la valeur de la capacité. En introduisant le potentiel chimique μ des électrons de l'électrode n l'intérêt de cette mesure apparaît immédiatement. En effet, la variation de capacité $C - C_0 = -Me\alpha \frac{\partial \mu}{\partial V} \frac{\partial \langle n \rangle}{\partial \mu}$ se trouve être directement liée à la densité d'état moyenne $\rho(\mu, \langle n \rangle) = \frac{\partial \langle n \rangle}{\partial \mu}$. Comme les boîtes se remplissent au fur et à mesure que la tension décroît, il s'agit là d'une densité d'état à une particule des boîtes quantiques déjà remplies par $\langle n \rangle$ électrons. La succession des niveaux quantiques des boîtes renormalisés par les interactions à n particules doit se manifester dans un spectre $C(V)$ de la capacité. De plus, si la distribution des niveaux quantiques des boîtes n'est pas trop étendue cela doit aussi mettre en évidence le régime du blocage de Coulomb. Par exemple, en considérant le remplissage du niveau fondamental des boîtes par deux électrons, la variation de capacité $C(V) - C_0$ doit être nulle quand le potentiel chimique se trouve entre les états à 1 ou 2 électrons, c'est à dire $\mu_{BQ}(\langle n \rangle = 1) \leq \mu < \mu_{BQ}(\langle n \rangle = 1) + J_{ee}^{ss}$. Ici $\mu_{BQ}(n)$ est le potentiel chimique des boîtes quantiques remplies avec n électrons (i.e. l'énergie du n^{ime} électron dans une boîte quantique qui en contenait $n - 1$) et J_{ee}^{ss} est l'interaction de Coulomb entre les deux électrons sur l'état fondamental S . En pratique, l'importante distribution en énergie des niveaux quantiques (sur plusieurs dizaines de meV) d'un ensemble de boîtes rend difficile l'observation de ce régime de Coulomb.

Nos résultats sont reportés sur la figure 2.7 pour un échantillon possédant une grande densité de boîtes. La dérivée du spectre de capacité permet plus facilement de révéler trois singularités à ~ 0 , ~ 750 puis ~ 1250 mV.

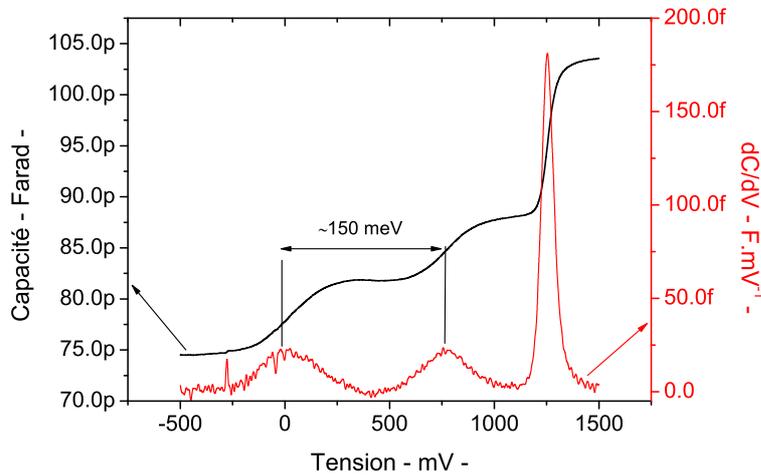


FIG. 2.7: Spectre de capacité et sa dérivée, pour un échantillon possédant une forte densité de boîtes quantiques, réalisé dans l'obscurité. Température de 10 K.

La première peut être attribuée à l'augmentation de capacité due à l'occupation des boîtes quantiques en électrons sans distinction du régime de Coulomb ni des différents niveaux quantiques. Cette interprétation a été confirmée par la même expérience sur un échantillon zone fron-

tière, qui ne présentait pas cette singularité au voisinage de 0 V. La deuxième bosse de la capacité concernerait l'occupation des états de conduction de la couche de mouillage. La différence de tension $\Delta V = 750$ mV correspond à une différence d'énergie $\alpha\Delta V$ de ~ 107 meV, compatible avec un écart en énergie entre le fondamental de conduction des boîtes et le bas des niveaux de la couche de mouillage. En luminescence, cette dernière apparaît à une énergie de 1.42 eV, par conséquent la première bosse à 0 mV serait associée aux boîtes ayant une énergie moyenne de 1.29 eV, ce qui correspond d'ailleurs au maximum de luminescence de l'échantillon. Et enfin la dernière augmentation de capacité à 1250 mV se rapporte au chargement de la bande de conduction du GaAs. Nous remarquons que le spectre de capacité ne résout pas le chargement des boîtes à un électron puis à deux électrons. Ceci semblerait traduire le fait que la distribution inhomogène des boîtes quantiques est de l'ordre ou supérieure à la valeur typique de J_{ee}^{ss} valant environ 20 meV. Par ailleurs, on peut noter que le spectre de capacité inclut l'effet de déplétion au niveau du contact ohmique, qui contribue à un background linéaire avec la tension [4], et qui n'était pas pris en compte dans la modélisation présentée au-dessus.

Pour essayer de sonder un peu mieux les niveaux quantiques des boîtes par cette technique, nous avons mené quelques mesures de capacité sous illumination par un laser hélium-néon. L'objectif est de modifier le peuplement moyen des niveaux en créant des paires électron-trou, et donc la densité d'état accessible par les électrons du réservoir. Les effets produits par l'excitation optique dépendent en fait assez peu de l'énergie d'excitation (couche de mouillage à 1.42 eV ou GaAs massif). On voit sur la figure 2.8a que la structure du spectre de capacité devient plus complexe. A notre connaissance, il n'y a pas, dans la littérature, d'expérience de capacité menée sous une excitation conduisant à des transitions interbandes ⁶. La bosse que nous avons attribuée au remplissage des niveaux de boîtes, en absence d'illumination, semble se scinder en deux, faisant apparaître une nouvelle singularité à -100 mV. L'écart entre ces deux bosses augmente avec la puissance d'excitation (*c.f* figure 2.8b). On note aussi l'apparition d'un pic de capacité à -500 mV, uniquement sous très forte puissance d'excitation (à partir de quelques mW).

L'interprétation de ce phénomène s'avère assez délicate. Néanmoins, un mécanisme qualitatif pourrait l'expliquer. Sous excitation lumineuse, la mesure de capacité sonde deux types de boîtes : celles qui ont capturé une paire électron-trou et les autres. Lorsque l'échantillon est polarisé en inverse, l'échappement des électrons photo-crésés dans la boîte est rapide et on peut admettre que le chargement en électron reste imposé par le potentiel chimique du réservoir. Les trous photo-crésés ont quant à eux un temps d'échappement beaucoup plus grand, du fait de leur masse effective plus élevée. En régime stationnaire, l'illumination est donc susceptible de maintenir une population de trous importante, lesquels produisent un abaissement de l'énergie du niveau fondamental de conduction en raison de l'interaction de Coulomb. De ce fait, les boîtes contenant un trou, voire plusieurs, dans la bande de valence doivent se charger en électrons à des tensions plus basses que les boîtes vides. Cet effet pourrait expliquer l'apparition de la deuxième bosse à -100 mV. En plus de cela, l'augmentation de la puissance d'excitation accroît la population des boîtes chargées en trou, avec comme conséquence une meilleure résolution de ce pic [5]. Néanmoins, il faut reconnaître que cet argumentaire qualitatif repose sur peu de

⁶Par contre, la spectroscopie de capacité a été couplée avec des excitations intra-bandes

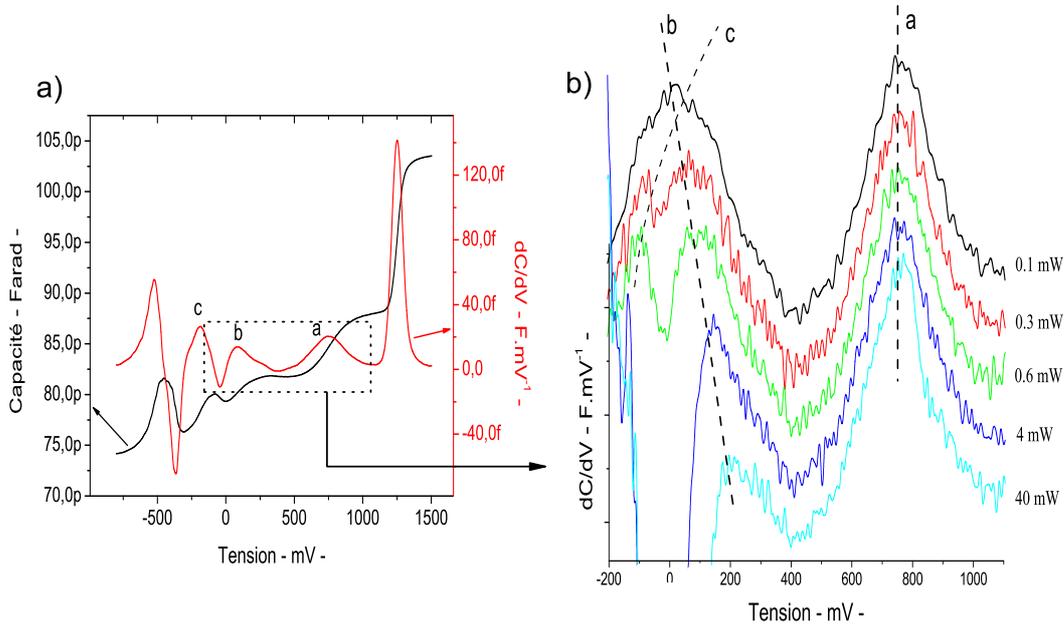


FIG. 2.8: a) Spectre de capacité effectué sous illumination par un laser He-Ne (pour une puissance de 4 mW). b) Evolution de la dérivée dC/dV en fonction de la puissance d'excitation. Les spectres ont été décalés en hauteur. Température de 10 K.

certitudes et par exemple n'interprète pas vraiment le pic de capacité à -500 mV, si ce n'est peut être par une accumulation importante de trous dans les boîtes et contre la barrière d'AlGaAs. D'ailleurs, les mesures I-V sous excitation optique révèlent (voir section suivante) qu'à cette tension correspond une forte augmentation du photocourant, lequel pourrait interférer avec la mesure de la capacité.

Bien que le chargement des boîtes ait été démontré ici par des mesures purement électriques, il le sera de manière plus probante encore par des mesures de photoluminescence de boîtes quantiques uniques. La partie qui va suivre va nous familiariser davantage avec le dispositif.

2.1.4 Effet du champ électrique sur la luminescence

Le champ électrique de la structure influence fortement l'intensité de la luminescence en favorisant notamment l'échappement des porteurs par effet tunnel hors de la boîte quantique. Il semble donc tout à fait instructif d'essayer de quantifier le temps d'échappement tunnel. En ramenant le problème à celui d'un électron devant traverser une barrière tunnel triangulaire (produite par le champ électrique) on peut utiliser l'approximation WKB à 1 dimension :

$$\tau^{-1} = \frac{\hbar\pi}{2m^*L^2} \exp\left[\frac{-4}{3\hbar eF} \sqrt{2m^*E_i^3}\right] \quad (2.2)$$

Nous pouvons tracer le graphique pour l'électron avec les paramètres suivants $L = 1.4 \text{ nm}$, $m_e^* = 0.067m_0$, et les énergies de ionisation E_i pour l'état S : 140 meV et pour l'état P : 80 meV. Nous constatons que l'électron confiné sur le niveau fondamental de la boîte peut s'échapper

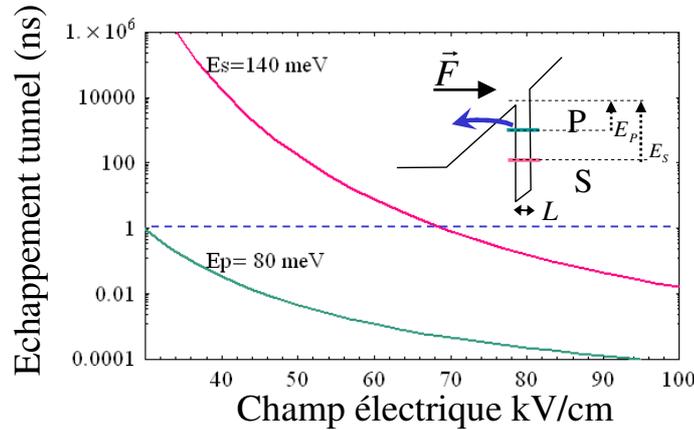


FIG. 2.9: Temps d'échappement tunnel pour l'électron en fonction du champ électrique

en des temps inférieurs au temps typique de durée de vie radiative ($\sim 1 \text{ ns}$), si le champ électrique est suffisamment fort (à partir de 70 kV/cm), diminuant alors l'intensité de luminescence. Comme nous l'avons déjà dit, le mécanisme d'échappement pour les trous est beaucoup plus lent, en raison d'une masse effective plus grande [5]. Dans le régime des forts champs électriques, la durée de vie de la luminescence est alors principalement dominée par l'échappement des électrons. Ceci est notamment illustré par la figure 2.10a, où l'intensité de macrophotoluminescence s'affaiblit grandement quand la tension diminue, jusqu'à extinction. De plus nous observons que le maximum de luminescence se décale vers les hautes énergies avec la tension. Nous détaillerons cela dans la partie suivante, mais nous pouvons d'ores et déjà associer cet effet au chargement des boîtes quantiques.

La compétition entre la luminescence et le photocourant est clairement visible en comparant les figures 2.10a et b. Sur cette dernière est reporté en plus du photocourant en fonction de l'énergie d'excitation pour différentes tensions négatives, le spectre de macrophotoluminescence (à 0 V). Quand l'excitation crée des paires électron-trou dans les boîtes quantiques de manière résonnante, le photocourant associé à l'échappement des porteurs augmente avec le champ électrique interne (*i.e* la tension diminue), ce qui correspond bien à une chute du signal de luminescence. La spectroscopie du photocourant s'avère donc une technique assez simple afin de mesurer le spectre d'absorption d'un ensemble de boîte ; cette technique a pu être employée avec succès par R. Oulton *et al.* [6] sur boîtes quantique uniques pour sonder la densité d'état des transitions et mettre en évidence les transitions mixtes.

Nous remarquons qu'aussi bien en photocourant qu'en luminescence (excité à forte puissance), il est difficile d'identifier des transitions de type $P - P$. La raison à cela est à nouveau le fort élargissement inhomogène de ces transitions pour cet échantillon.

Enfin le dernier point qui sera discuté ici, concerne la caractéristique $I(V)$ sous illumination.

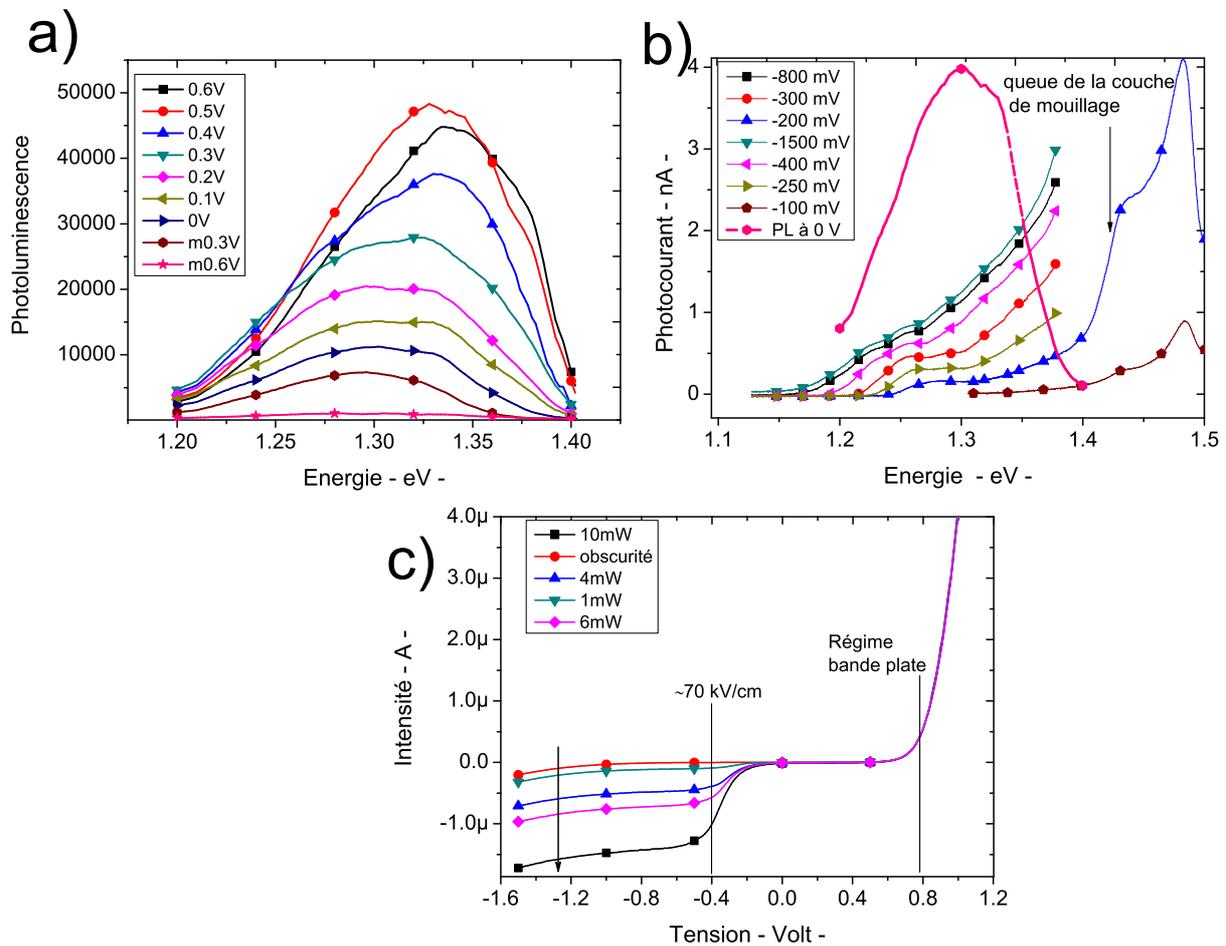


FIG. 2.10: a) Spectres de macro-photoluminescence de l'échantillon n-i-Schottky en fonction de la tension b) Photocourant en fonction de l'énergie de l'excitation optique pour différentes tensions c) Courbes I(V) en fonction de la puissance d'excitation.

La figure 2.10c montre l'évolution des caractéristiques en fonction de la puissance d'excitation. Comme on s'y attend, le dispositif fonctionne en photodétecteur lorsqu'on le polarise en inverse. Le photocourant augmente notablement au voisinage de -0.4 V, correspondant à un champ électrique de 70 KV/cm⁷, pour lequel le temps d'échappement de l'électron S, devient comparable au temps de vie radiatif (2.9). Expérimentalement, la réponse en photocourant du dispositif est mise à profit pour asservir (manuellement) l'excitation du spot laser sur les ouvertures micrométriques laissées par les micro-billes.

⁷Cette valeur est calculée en utilisant les caractéristiques nominales de l'échantillon 2.1

2.2 Effets de chargements sur boîtes quantiques uniques

2.2.1 Montage de micro-photoluminescence

Un schéma du montage expérimental de micro-photoluminescence est montré sur la figure 2.11. La source est un laser Ti :Saphir couvrant une plage spectrale de 1.3 à 1.5 eV. Un polariseur de Glan-Thomson et une lame quart d'onde achromatique sont placés sur le chemin de l'excitation pour polariser circulairement l'excitation. Le cube séparateur, conçu pour ne pas altérer la polarisation de la lumière réfléchiée ou transmise, permet l'excitation et la collection de la luminescence, via un microscope $\times 50$ de longue frontale. Les échantillons sont placés dans un cryostat à doigt froid monté sur des déplacements motorisés, l'axe optique étant définitivement fixé. Le système d'analyse de la polarisation de la luminescence (lame $\lambda/4$ +analyseur) est placé sur le chemin de détection, avant la dispersion spectrale par un double monochromateur de focale 0.6 m.

La détection peut être soit monocanale en plaçant une diode à avalanche sur l'une des sorties du monochromateur, soit assurée par une caméra CCD refroidie à l'azote liquide, permettant une résolution spectrale de $30 \mu\text{eV}$. La CCD permet alors d'explorer un intervalle spectral d'environ 10 meV. Pour obtenir des spectres avec un bon rapport signal sur bruit, la durée d'acquisition est typiquement de 20 secondes. Les puissances d'excitation dépendent largement de l'énergie. Elle peuvent varier de quelques dizaines de μW à l'énergie de la couche de mouillage (1.42 eV) à 10 mW pour une excitation intraboîte. L'énergie lumineuse est focalisée par l'objectif de microscope sur un spot de $\sim 1 \mu\text{m}$ de diamètre.

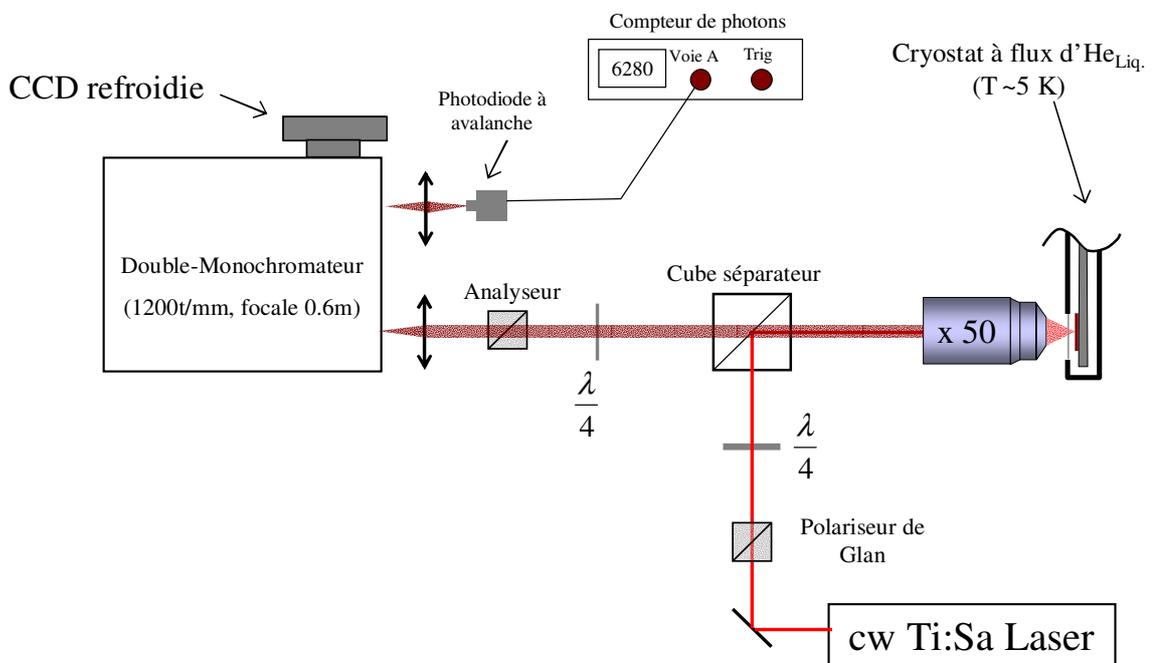


FIG. 2.11: Description du montage de micro-photoluminescence.

2.2.2 Echantillon n-i-Schottky

2.2.2.1 Etude en fonction de l'énergie d'excitation

Pour se familiariser avec les propriétés de luminescence de l'échantillon n-i-Schottky, nous pouvons examiner le cas typique d'une boîte luminescente à une énergie de 1.26 eV. Cette boîte sera précisément celle étudiée dans les chapitres *V* et *VI* qui aborderont les effets nucléaires. La figure 2.12 représente en échelle de couleur les spectres de la luminescence obtenus avec la caméra CCD de cette boîte quantique en fonction de la tension appliquée, et ce pour différentes énergies d'excitation, à savoir 1.31, 1.34 puis 1.42 eV (i.e. au seuil de la couche de mouillage). Les excitations à 1.31 eV et 1.34 eV correspondent à une excitation "intra-boîte". Cependant nous ne pouvons affirmer avec certitude quelles transitions mixtes sont impliquées. Il faudrait pour cela analyser les spectres de l'excitation de la photoluminescence (PLE). Il semble évident que les spectres de luminescence se complexifient en augmentant l'énergie d'excitation. Commençons par détailler le spectre le plus simple pour l'excitation à 1.31 eV.

Formation des trions pour une excitation intra-boîte

Entre 0 et 0.15 V, la raie X^0 est clairement identifiée par l'analyse linéaire de la polarisation de la luminescence, révélant la structure fine associée. A 0.3 mV, la raie de luminescence de X^- apparaît à une énergie de 6 meV en dessous de l'exciton neutre. L'énergie de liaison du trion négatif voisine de -6 meV s'avère être une constante assez robuste des boîtes quantiques InAs, d'ailleurs relevée par toutes les équipes travaillant sur ce type de structure [7, 8, 9, 10]. Notons qu'elle correspond au premier ordre à la différence des énergies de Coulomb $\Delta E_{X^- - X^0} = J_{ee}^{ss} + J_{eh}^{ss}$. Par ailleurs, l'analyse en polarisation linéaire de cette raie X^- ne montre pas de structure fine comme l'on s'y attend. Toutefois, il est notable que sur notre échantillon, X^- et X^0 coexistent dans un large domaine de tensions contrairement à la majorité des références citées ci-dessus. Ceci confirme qu'entre 0.15 et 0.35 mV, la boîte est chargée avec un électron résident ; l'électron photocréé peut alors soit relaxer dans la boîte, et contribuer à la luminescence de l'état X^- , soit s'échapper par effet tunnel, auquel cas seul l'état X^0 donne lieu à la luminescence. Ce mécanisme explique ainsi la coexistence de X^0 et X^- .

A partir de 0.35 V, la raie relative à X^0 disparaît, et seule la luminescence de X^- demeure. Ceci confirme le chargement de la boîte avec deux électrons résidents. L'électron photocréé sur l'état excité ou sur le continuum associé à la couche de mouillage s'échappe rapidement, laissant au trou photocréé la possibilité de former l'état X^- avec les deux électrons. Nous pouvons alors déterminer les zones de stabilité à un puis deux électrons de dopage de la boîte quantique (espaces entre les traits verticaux). Il est à noter que la différence de tension entre le régime à un électron stable (0.15 mV) puis le régime à deux électrons stables (0.35 mV), correspond une énergie $\alpha\Delta V$ proche de $J_{ee}^{ss} \sim 20\text{ meV}$. Ces mécanismes de formation de X^- contrôlés par la tension auront une grande importance au chapitre suivant pour expliquer l'évolution de la relaxation du spin du trou avec la tension.

Remarquablement, pour des tensions négatives, il apparaît au détriment de la raie X^0 la luminescence du trion positif X^+ situé environ 2 meV au dessus de l'exciton neutre. L'énergie de liaison

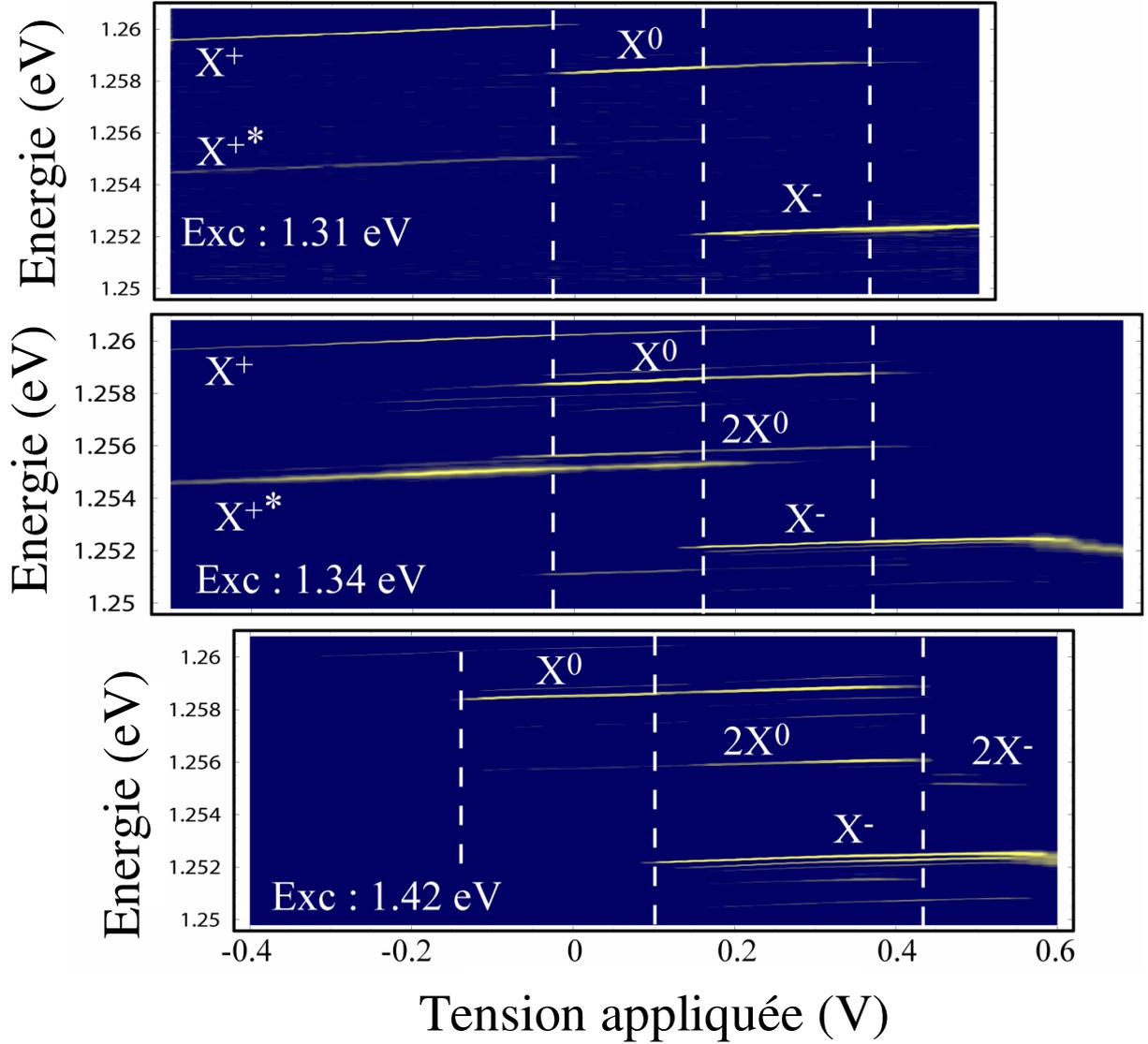


FIG. 2.12: Spectres de la luminescence d'une boîte unique représentés sur une échelle de couleur, en fonction de la tension appliquée. Trois énergies différentes ont été utilisées pour l'excitation comme indiqué sur les graphes.

de X^+ , $\Delta E_{X^+ - X^0} = J_{hh}^{ss} + J_{eh}^{ss}$ est donc positive. En considérant les énergies de liaison X^+ et X^- , nous pouvons déduire les inégalités relatives aux intégrales de Coulomb :

$$J_{hh}^{ss} > |J_{eh}^{ss}| > J_{ee}^{ss} \quad (2.3)$$

Ce résultat est en accord avec l'idée naïve que la fonction enveloppe du trou dans la boîte est moins étendue que celle de l'électron en raison de sa plus forte masse effective.

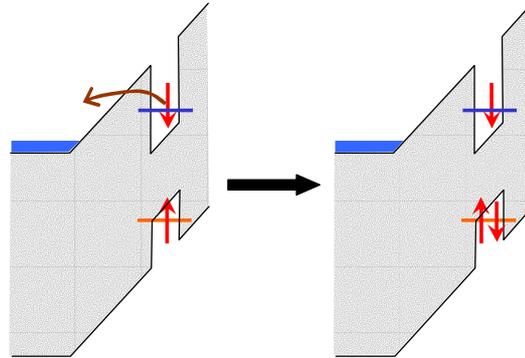


FIG. 2.13: Mécanisme de formation de X^+ pour une excitation intraboîte.

Le mécanisme de formation de X^+ est largement dépendant du choix de l'énergie d'excitation ; sa luminescence disparaît progressivement lorsque l'énergie d'excitation augmente. La figure 2.13 montre un schéma des processus de relaxation qui probablement interviennent dans ce mécanisme. Un premier processus d'absorption d'un photon crée une paire électron-trou dans la boîte. Cependant, l'électron s'échappe de la boîte en raison du fort champ électrique auxquelles on se trouve, alors que le trou une fois relaxé sur le fondamental peut rester suffisamment longtemps pour qu'au cycle d'absorption suivant, l'électron photocréé soit stabilisé par la présence de deux trous, formant ainsi l'état de charge X^+ . Ce mécanisme à deux photons permet ainsi d'expliquer d'une part que le trion positif ne luminesce qu'à forte puissance d'excitation et d'autre part, souligne l'importance de l'excitation intraboîte qui est nécessaire pour créer des trous directement dans la boîte.

Sur cet échantillon, toutes les boîtes observées montrent qualitativement un comportement similaire à celui que nous venons de décrire, pour une excitation intraboîte.

Excitation de la couche de mouillage

Nous constatons qu'en excitant à plus haute énergie, les spectres de luminescence laissent apparaître de nouvelles raies associées aux excitons multi-chargés. Leur structure fine sera détaillée plus loin. En plus de cela, les zones de stabilité en tension pour la boîte chargée à un puits à deux électrons sont décalées vers les tensions négatives, par rapport au cas de l'excitation intraboîte (1.31 et 1.34 eV). Les porteurs photocréés dans la couche de mouillage et séparés par le champ électrique de la structure, participent à écranter ce dernier.

2.2.2.2 Effet de l'environnement électrostatique sur les raies de luminescence

Pour l'échantillon n-i-Schottky, l'écrantage du champ électrique est principalement dû à la formation d'un gaz bidimensionnel de trous, se formant contre la barrière d'AlGaAs (c.f figure 2.14). Des effets similaires ont été observés par J.M Smith, étudiant un échantillon de même structure que le notre [11].

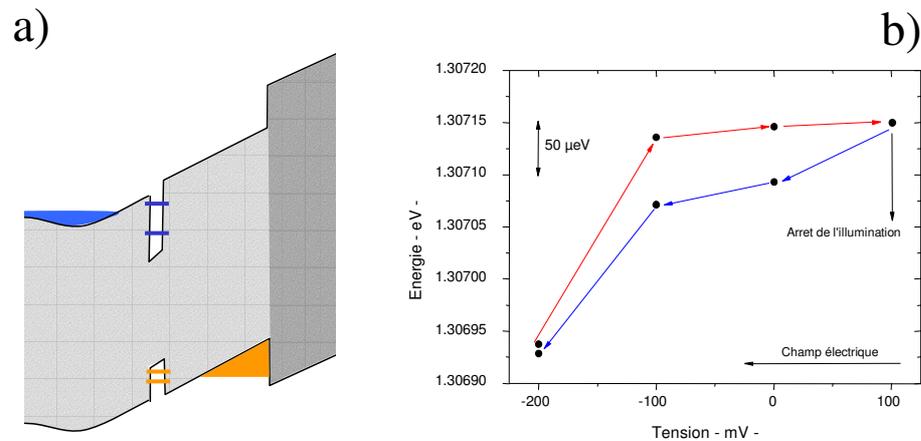


FIG. 2.14: a) Formation du gaz 2D de trous créé par l'excitation optique. b) Position en énergie d'une raie de luminescence (X^+) en fonction de la tension de grille.

En plus de ce qui vient d'être mentionné plus haut sur les effets de chargement, nous avons observé un effet tout-à-fait singulier concernant la présence de ce gaz de trous. Nous avons suivi la position d'une raie de luminescence en fonction de la tension, pour une excitation à 1.42 eV (couche de mouillage) et à forte puissance (1.6 mW). Nous avons effectué un cycle en tension de -200 mV à +100 mV, coupé l'excitation optique à 100 mV, puis terminé le cycle de 0 à -200 mV. La figure 2.14b montre que l'effet Stark n'est pas le même à l'aller puis au retour. L'arrêt de l'illumination a pour conséquence la destruction du gaz de trous et le champ électrique effectif au niveau de la boîte est donc plus intense. Le gaz de trou se reforme progressivement en augmentant la courbure de la bande de valence vers les tensions négatives ; la position de la raie revient donc à sa position d'origine à -200 mV. Une telle hystérésis révèle que le champ effectif et éventuellement le chargement des boîtes ne sont pas complètement déterminés par la tension appliquée. C'est là un effet assez indésirable qui heureusement ne se manifeste quasiment plus en excitation sous la couche de mouillage, mais qu'il faut bien sûr garder à l'esprit.

2.2.2.3 Effets de chargement observés sur ensemble de boîtes quantiques

Maintenant que nous nous sommes familiarisés avec le comportement d'un échantillon à faible densité de boîtes en étudiant les effets de chargement sur boîtes quantiques uniques, nous pouvons profiter de l'expérience acquise pour interpréter les spectres de luminescence d'un ensemble de boîtes à charge contrôlable.

Les graphiques 2.15a et 2.15b montrent les intensités de luminescence en fonction de la tension pour la boîte unique, que nous avons vue plus haut, et pour notre échantillon "ensemble de boîtes" dont on a mesuré la capacité, dans le régime d'excitation intraboîte. La luminescence de l'ensemble de boîtes est intégrée sur une fenêtre spectrale de 10 meV (*c.f.* spectre 2.16a). En comparant qualitativement l'évolution présentée sur ces deux graphiques, il est visiblement possible de corrélérer l'intensité de photoluminescence de l'ensemble de boîtes à des zones de

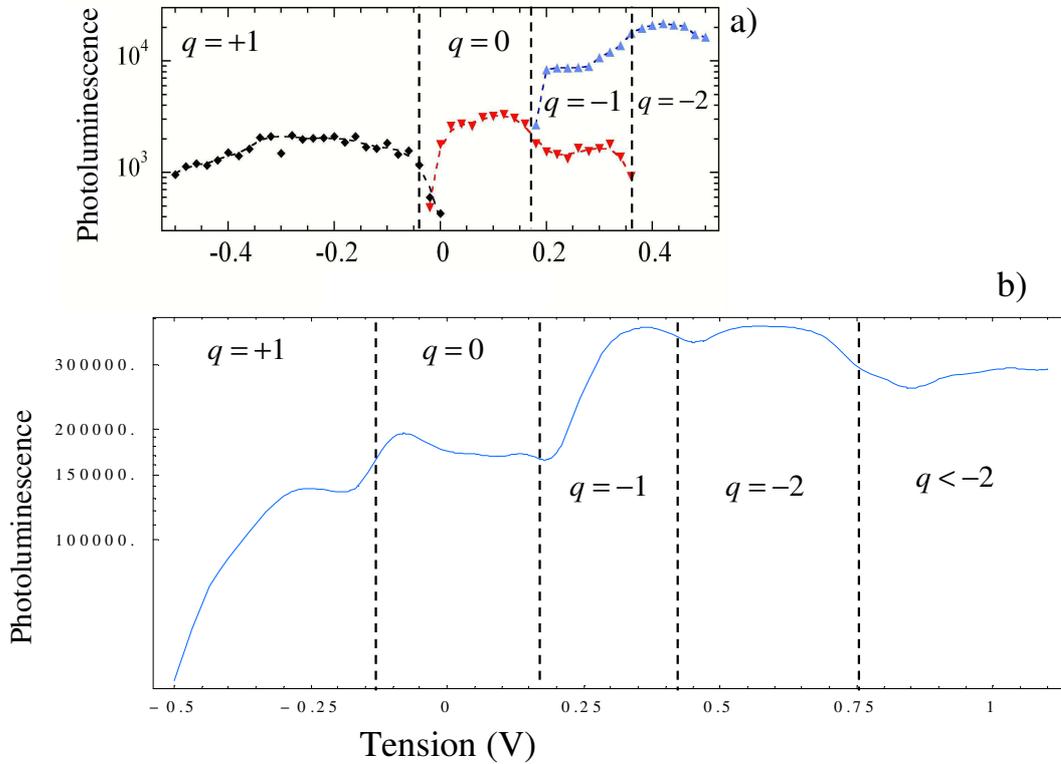


FIG. 2.15: a) Evolution de l'intensité de photoluminescence en fonction de la tension pour les états de charges X^+ , X^0 et X^- . Excitation à 1.31 eV. b) Evolution de la photoluminescence d'un ensemble de boîtes en fonction de la tension. Energie des boîtes à 1.26 eV et excitation à 1.34 eV.

tensions pour lesquelles la luminescence est majoritairement issue de la recombinaison de trions X^+ (entre -500 et ~ -100 mV), d'excitons neutres X^0 (entre ~ -100 et ~ 200 mV), de trions X^- (boîtes chargées avec un électron de ~ 200 mV à ~ 400 mV, puis à deux électrons de ~ 400 mV à 750 mV) et enfin d'états multichargés au delà. Nous verrons au chapitre suivant que l'évolution de la polarisation circulaire de l'ensemble de boîtes, en fonction de la tension donne également une très bonne indication sur l'état de charge qui participe majoritairement à la luminescence. Celle-ci s'avèrera conforme à cette première analyse.

En plus de cela, l'analyse fine des spectres d'ensemble de boîtes permet d'extraire facilement des informations d'ordre statistique sur ces échantillons. En divisant en quatre zones le spectre acquis à la CCD (voir 2.16a), nous sélectionnons ainsi quatre familles de boîtes dont l'énergie de luminescence est centrée respectivement sur 1.258, 1.2605, 1.2625 et enfin 1.265 eV. Les variations relatives de l'intensité de luminescence en fonction de la tension appliquée sont reportées sur le graphique 2.16b pour chaque famille de boîtes considérée. Dans le domaine de tension (200mV - 400mV), correspondant au chargement des boîtes avec un électron, les

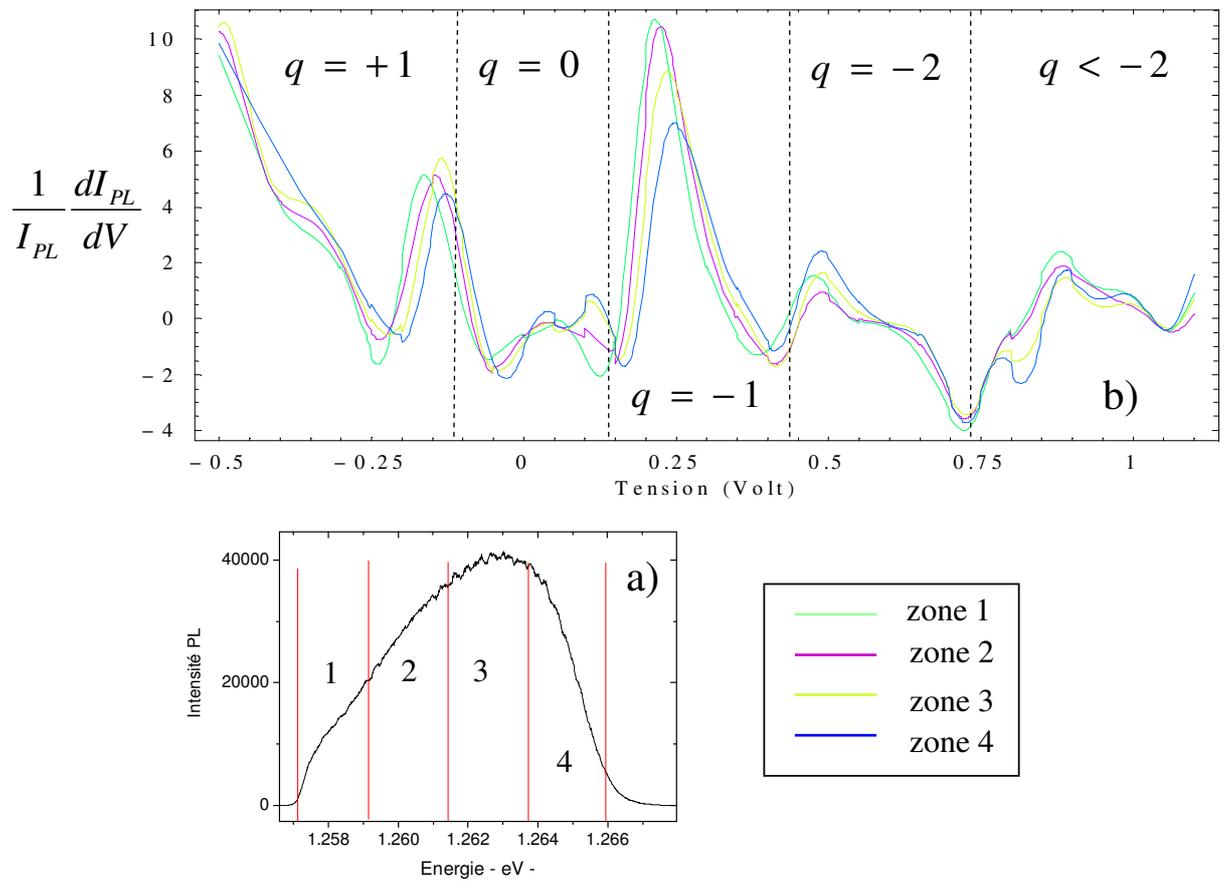


FIG. 2.16: a) Spectre acquis à la CCD. b) Variations relatives de l'intensité en fonction de la tension pour les quatre zones.

courbes sont clairement décalées, traduisant un chargement plus facile des boîtes émettant à plus basse énergie. Cette corrélation évidemment attendue est d'ailleurs confirmée par l'observation sur boîtes quantiques uniques.

2.2.3 Echantillon p-i-Schottky

Comme on l'a vu, les échantillons n-i-Schottky permettent le chargement des boîtes quantiques avec la tension de grille de manière très contrôlée. Inversement, l'échantillon p-i-Schottky que nous avons étudié montre un comportement général tout-à-fait différent. Il se distingue de deux façons. Tout d'abord, les diodes processées s'avèrent très fragiles, dans le sens où une excitation de quelques mW à l'énergie de la couche de mouillage peut l'endommager de manière irréversible, ou même parfois un simple éclairage avec une lampe de poche. De plus, pour la majorité des diodes, les effets de chargement avec la tension sont beaucoup moins bien marqués. Nous avons ainsi observé que des états de charge positif (X^+ , X^{2+} , etc) pouvaient coexister avec

des états de charge négative sur de large plage de tension. Cette différence significative de comportement a sans doute pour origine la plus grande masse des trous qui rend leur couplage tunnel avec le réservoir de trous moins efficace. Il est également possible qu'un gaz d'électrons se forme contre la barrière d'AlGaAs comme dans le cas de l'excitation à haute énergie des échantillons n-i-Schottky (c.f schéma 2.17).

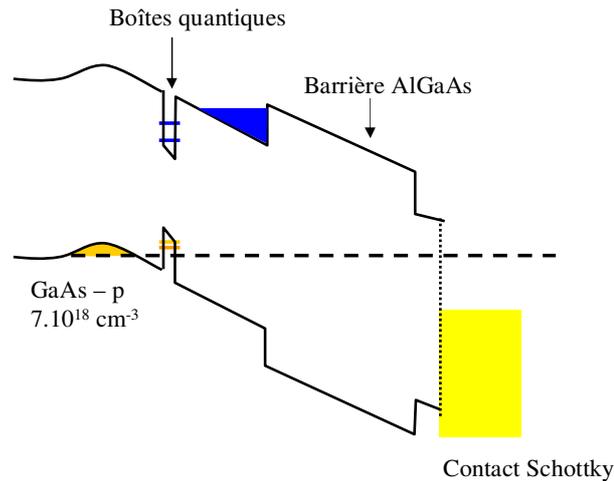


FIG. 2.17: Structure de bande de la diode p-i-Schottky.

La structure actuelle (c.f. 2.1) pourrait être notablement améliorée en rapprochant le plan de boîtes de l'électrode dopée p, pour optimiser le couplage tunnel, et en éloignant la barrière d'AlGaAs, pour s'affranchir des effets parasites d'un éventuel gaz d'électrons.

2.3 Structures fines des excitons multichargés

En excitant à plus haute énergie nous avons vu que d'autres raies de luminescence relatives à des complexes excitoniques multichargés pouvaient apparaître. Ceux-ci se caractérisent par des structures assez complexes de leur spectre d'émission, qui constituent une signature permettant de les identifier. En principe ces états devraient pouvoir se former sous le seul contrôle de la tension de grille qui détermine le remplissage des boîtes. En fait, la clé pour générer ces complexes excitoniques repose sur l'efficacité du couplage tunnel, soit avec le gaz de porteurs obtenu par dopage, et soit avec le gaz de porteurs photo-crées (électrons ou trous). Récemment, il a ainsi été démontré l'obtention d'états chargés X^{-6} à X^{+8} sur une même boîte quantique [12]. Généralement la formation d'excitons doublement chargés X^{2-} est assez commune. Ce n'est pas le cas avec notre échantillon n-i-Schottky, et nous allons voir dans ce qui suit pourquoi.

2.3.1 Exciton doublement chargé X^{2-} et X^{2+}

Prenons comme cas d'école l'exciton doublement chargé X^{2-} . L'état fondamental est constitué d'un électron sur un niveau P de la boîte, deux électrons sur le niveau fondamental S et un

trou sur le niveau fondamental de valence. Ainsi l'état fondamental de X^{2-} , comme pour le cas de l'exciton neutre, possède un moment angulaire totale $J_z = \pm 1$ ou $J_z = \pm 2$ ⁸. Ces deux états sont séparés par le terme d'échange électron P/trou S noté Δ_{he}^{sp} . Cependant l'état $J_z = \pm 2$ n'est pas "noir", puisque quelque soit l'état de spin du trou, celui ci peut toujours se recombiner avec l'un des deux électrons S. La recombinaison radiative laisse dans la boîte un électron S et un électron P formant soit un état singulet $S_0 = 1/\sqrt{2}(|\downarrow, \uparrow\rangle - |\uparrow, \downarrow\rangle)S_eP_e$, soit un des trois états triplets dégénérés $T_0 = 1/2(|\downarrow, \uparrow\rangle + |\uparrow, \downarrow\rangle)(S_e(1)P_e(2) - S_e(2)P_e(1))$, $T_{+1} = 1/\sqrt{2}|\uparrow, \uparrow\rangle(S_e(1)P_e(2) - S_e(2)P_e(1))$ et $T_{-1} = 1/\sqrt{2}|\downarrow, \downarrow\rangle(S_e(1)P_e(2) - S_e(2)P_e(1))$. Les transitions optiques entre états initiaux et états finaux (*c.f.* schéma 2.18a) déterminent alors la structure fine observée sur les spectres de photoluminescence. B. Urbaszek *et al.* ont ainsi résolu entièrement cette structure fine associée à X^{2-} [9] (spectre 2.18b). Comme caractéristique remarquable, on peut noter la faible intensité et la largeur de raie assez forte de la transition c, dont l'état final est un état singulet S_0 . Ce dernier possède une durée de vie très faible, puisqu'il peut relaxer rapidement vers l'état $|S_e \uparrow, S_e \downarrow\rangle$ sans mettre en jeu de retournement de spin. Cette faible durée de vie de quelques ps explique alors la largeur de raie de l'ordre du meV observée.

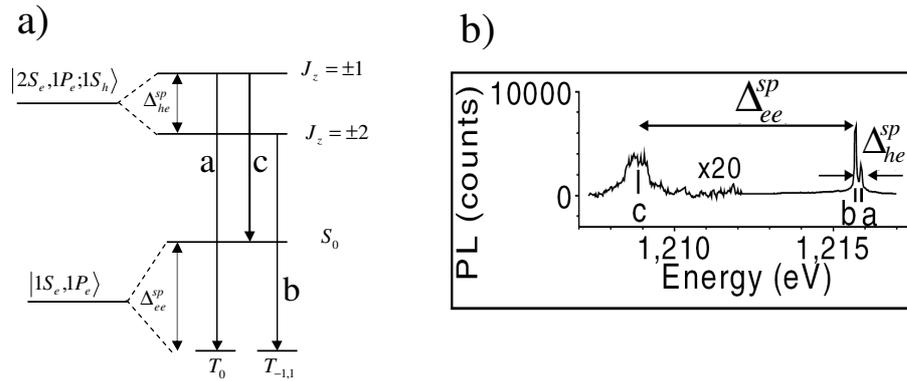


FIG. 2.18: a) Schéma des transitions optiques de X^{2-} . b) Structure fine de X^{2-} [9]

Qu'en est-il pour notre échantillon n-i-Schottky ?

En augmentant la tension, il apparaît du côté basse énergie de X^- une raie de luminescence assez large ($\sim 160 \mu\text{eV}$) que nous attribuons aux transitions a et b du X^{2-} (spectres 2.19). L'écart énergétique attendu entre X^- et X_T^{2-} est de l'ordre de $\Delta(X^-, X_T^{2-}) = J_{ee}^{ps} + J_{eh}^{ps}$, soit dans le présent cas 0.5 meV, compatible avec les calculs de G. Bester *et al.* [13] confirmant que $0 < \Delta(X^-, X_T^{2-}) < 0.7 \text{ meV}$. A l'évidence, nous ne résolvons pas les transitions a et b, cependant un zoom permet de mettre en évidence un épaulement correspondant à la transition a. Un ajustement réalisé avec deux Lorentziennes permet alors de donner une estimation de Δ_{he}^{sp} de

⁸On ne considère ici que le moment angulaire lié à la partie de Bloch et au spin des états à une particule. L'électron sur une orbitale P pourrait en toute rigueur contribuer par un moment angulaire supplémentaire ± 1 mais la symétrie des boîtes conduit généralement à des états orbitaux de type P_x , P_y et de toute façon n'a que peu d'importance car l'électron P reste spectateur dans le processus de recombinaison optique

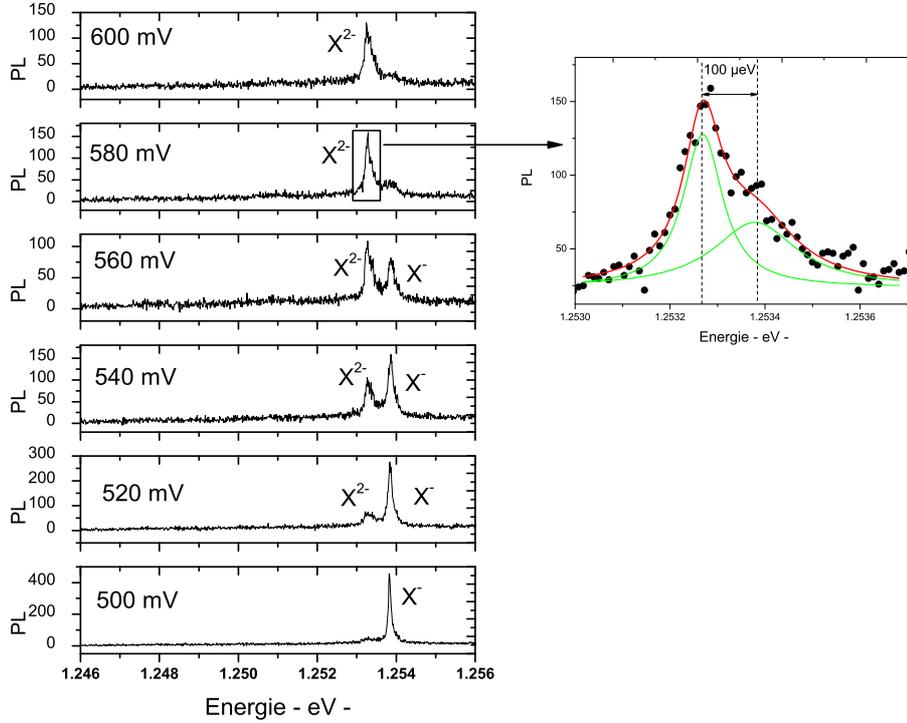


FIG. 2.19: A droite : évolution avec la tension. A gauche : zoom sur X^{2-} .

l'ordre de $100 \mu\text{eV}$. De plus, nous ne voyons pas la transition c , sans doute noyée dans le bruit de fond.

Toutes les boîtes étudiées montrent le même comportement : la largeur de raie du trion négatif augmente avec la tension quand la boîte passe progressivement du régime à deux électrons résidents, vers le régime à trois électrons, et les raies de luminescence de X_T^{2-} sont alors très larges, sans doute en raison du temps de vie faible de l'électron P, qui peut s'échapper vers le continuum si la barrière tunnel n'est pas assez bloquante.

L'exciton chargé X^{2+} présente une structure fine équivalente. Les composantes X_T^{2+} apparaissent à une énergie supérieure à celle de X^+ , et la composante singulet à plus basse énergie que l'exciton neutre, en accord avec [13]. La distance $X^+ - X_T^{2+}$ permet d'estimer $J_{hh}^{sp} + J_{eh}^{ss}$ à environ -2.2 meV , et pour les termes d'échange $\Delta_{eh}^{sp} \sim 120 \mu\text{eV}$ et $\Delta_{hh}^{sp} \sim 6 \text{ meV}$.

2.3.2 Biexcitons chargés $2X^-$ et $2X^+$

Prenons comme exemple le cas du biexciton chargé négativement. L'état initial est constitué de deux paires électron/trou et d'un électron P. Comme il ne peut y avoir d'interaction d'échange avec l'électron P, l'état initial est dégénéré $J_z = \pm 1/2$. La recombinaison radiative de la paire électron/trou va laisser dans la boîte un trion chaud X^{*-} , constitué de deux électrons S et P et d'un trou S. L'interaction d'échange électron S/électron P $\Delta_{ee}^{sp} \sim 5 \text{ meV}$ lève la dégénérescence

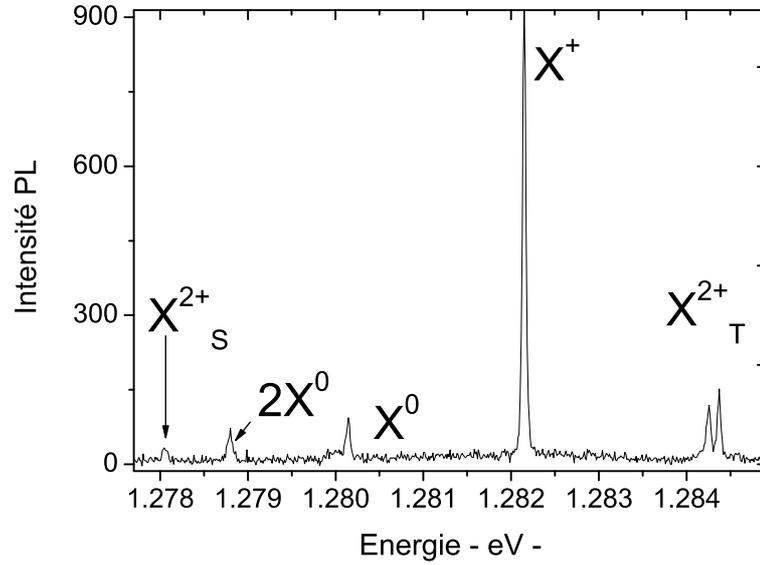
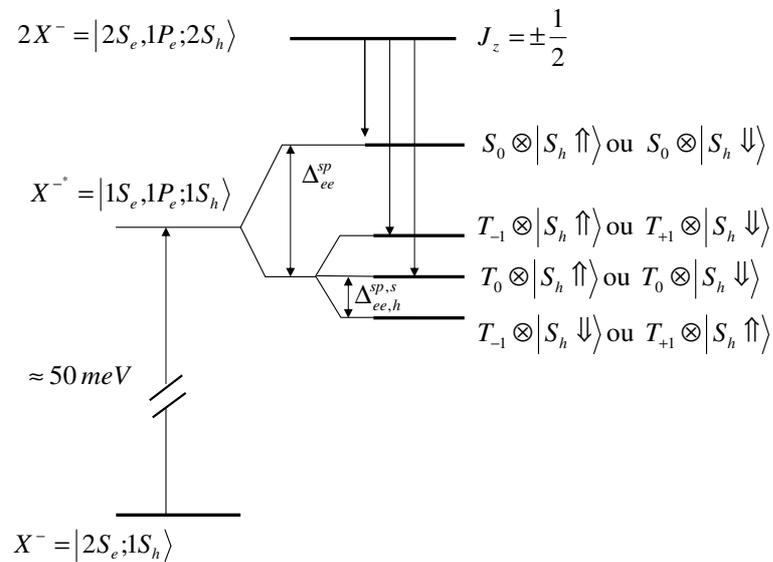
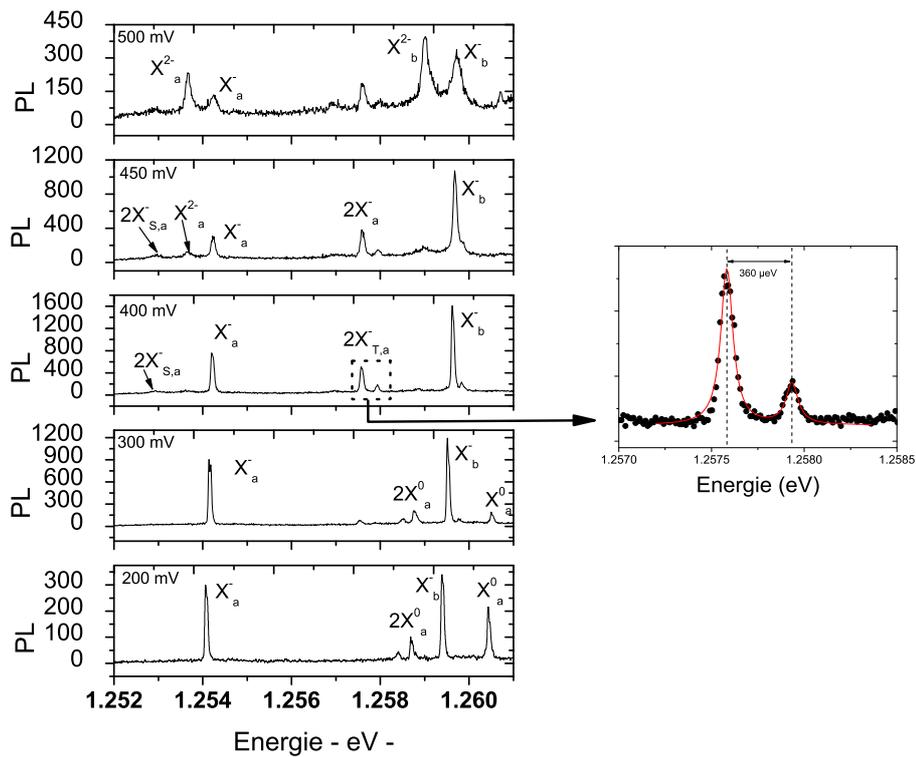


FIG. 2.20: Structure fine de X^{2+} (échantillon p-i-Schottky)

entre états singulet et triplets. Les états triplets $T_{\pm 1}$ subissent alors une nouvelle levée de dégénérescence induite par le terme d'échange électron/trou $\Delta_{ee,h}^{sp,s} = (\Delta_{he}^{sp} + \Delta_{he}^{ss})/2$. Les états $T_{-1} \otimes |S_h \downarrow\rangle$ et $T_{+1} \otimes |S_h \uparrow\rangle$ ne sont pas couplés à la lumière. La structure fine de $2X^-$ a donc deux composantes "triplet" et une composante "singulet". Les états finaux $S_0 \otimes |S_h \uparrow\rangle$ et $S_0 \otimes |S_h \downarrow\rangle$ ont une durée de vie faible car ils peuvent thermaliser très rapidement vers l'état relaxé X^- sans processus flip-flop. Comme pour X^{2-} , la composante singulet sera caractérisée par une forte largeur de raie. Les spectres de luminescence en fonction de la tension de grille sont reportés sur la figure 2.22, pour l'échantillon n-i-Schottky. La séparation entre états triplet $\Delta_{ee,h}^{sp,s}$ est de $360 \mu eV$. Or la structure fine de X^{2-} nous informe que Δ_{eh}^{ps} vaut environ $150 \mu eV$; on peut donc en conclure que $\Delta_{eh}^{ss} > \Delta_{eh}^{ps}$.

$2X^+$ a aussi été identifié sur l'échantillon p. Nous montrons ici un seul spectre (voir 2.23), car la luminescence des complexes X^{2+} , $2X^+$ dépend d'avantage de la puissance et de l'énergie d'excitation que de la tension de grille. L'écart en énergie des états triplets $\Delta_{hh,e}^{sp,s}$ est ici mesuré à $105 \mu eV$, et on peut en conclure que Δ_{eh}^{ss} est proche de Δ_{eh}^{sp} . Δ_{ee}^{sp} n'a pu être estimé car $2X_S^+$ n'est pas identifié.


 FIG. 2.21: Structure fine de $2X^-$

 FIG. 2.22: Observation de $2X^-$

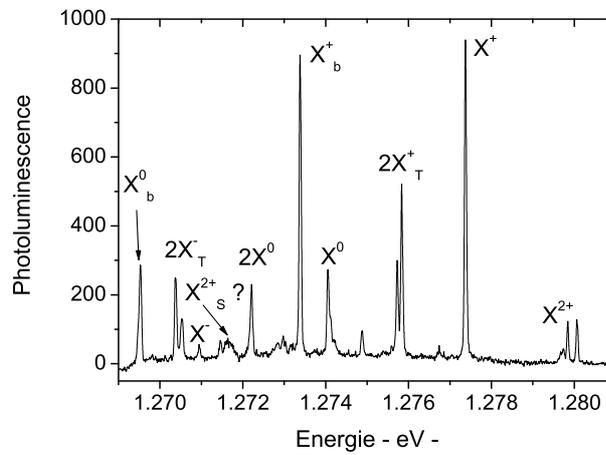


FIG. 2.23: Observation de $2X^+$ (échantillon p-i-Schottky)

2.4 Bilan

Au cours de ce chapitre, nous avons décrit les principales caractéristiques des échantillons p et n. Sur ce dernier, le contrôle de la charge par la tension de grille a été remarquablement mis en évidence par spectroscopie optique. Cependant, nous n'avons jamais observé la luminescence d'états de charge plus élevés tels que $2X^{2-}$ et X^{3-} .

Malheureusement, l'échantillon p ne présente pas les mêmes facilités. De nouveaux procédés sont en cours d'expérimentation pour trouver un contact ohmique diffusif type p, notamment Mg/Au.

Bibliographie

- [1] G. Medeiros et Al. Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 66(14), 1995.
- [2] R. William. *Modern GaAs Processing Methods*. Artech House, Boston-London, 1990.
- [3] T.C. Shen et Al. Quantum mechanical tunneling in an ohmic contact. *American Journal of Physics*, 60(6), 1992.
- [4] G. Medeiros-Ribeiro. Single-electron charging and coulomb interaction in InAs self-assembled dot arrays. *P.R.B*, 55(3), 1997.
- [5] M.C. Bodefeld et Al. Storage of electrons and holes in self-assembled InAs QDs. *Appl. Phys. Lett.*, 74(13), 1999.
- [6] R. Oulton, A.I Tartakovski, A. Ebbens, J. Cahill, J.J Finley, D.J Mowbray, M. S Skolnick, and M. Hopkinson. Temperature-induced carrier escape processes studied in absorption of individual InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 69(155323), 2004.
- [7] M.E. Ware et Al. Polarized fine structure in the photoluminescence excitation spectrum of a negatively charged quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 95(177403), 2005.
- [8] J.J. Finley et Al. Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InDaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 63(161305), 2001.
- [9] B. Urbaszek et Al. Fine structure of highly charged excitons in semiconductor QDs. *Phys. Rev. Lett.*, 90(247403), 2003.
- [10] C.W Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu. Knight-filed-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots. *Physical Review Letters*, 96(167403), 2006.
- [11] J.M Smith et Al. Carrier storage and capture dynamics in quantum-dot heterostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 82(21), 2003.
- [12] M. Edinger, R.J Warburton, K. Karrai, B.D Gerardot, and P.M Petroff. Forbidden transitions in the emission spectrum of a single QD. *AIP Conf. Proc.*, 772(739), 2005.
- [13] G. Bester et Al. Compositionnal and size-dependent spectroscopic shifts in charged self-assembled InAsGaAs QDs. *Phys. Rev. B*, 68(073309), 2003.

Chapitre 3

Orientation optique et relaxation de spin des trions

Sommaire

3.1	Orientation optique du spin d'un ensemble de boîtes	59
3.1.1	Choix de l'énergie d'excitation	61
3.1.2	Influence du champ électrique	62
3.1.3	Influence de la température	63
3.2	Orientation optique dans des boîtes quantiques uniques	64
3.2.1	Excitons neutres et doublement chargés	64
3.2.2	Trions négatifs	66
3.3	Dynamique de la polarisation circulaire photo-induite	71
3.3.1	Blocage de la relaxation de spin du trou dans les trions X^-	71
3.3.2	Relaxation du spin des électrons pour les trions X^+	74
3.4	Bilan	75

Au chapitre précédent, nous nous sommes familiarisés avec le dispositif à contrôle de la charge. Pour l'échantillon n-i-Schottky, nous avons clairement identifié les zones de tensions correspondant à la luminescence des trions positifs et négatifs. Dans le présent chapitre, nous allons voir les conditions qui permettent d'optimiser l'orientation optique du spin des porteurs photo-crés. Nous verrons alors que le régime de luminescence des trions X^- (X^+) permet d'estimer le temps de vie du spin des trous (électrons) photo-crés dans les boîtes quantiques.

3.1 Orientation optique du spin d'un ensemble de boîtes

Dans les boîtes quantiques que nous étudions, les niveaux électroniques sont discrétisés de manière similaire à ceux d'un atome, mais sur une échelle en énergie beaucoup plus modeste de quelques dizaines de meV. De plus ces niveaux, peuvent être couplés de manière résonnante au continuum d'états électroniques du GaAs massif sous l'effet d'un champ électrique, et dans

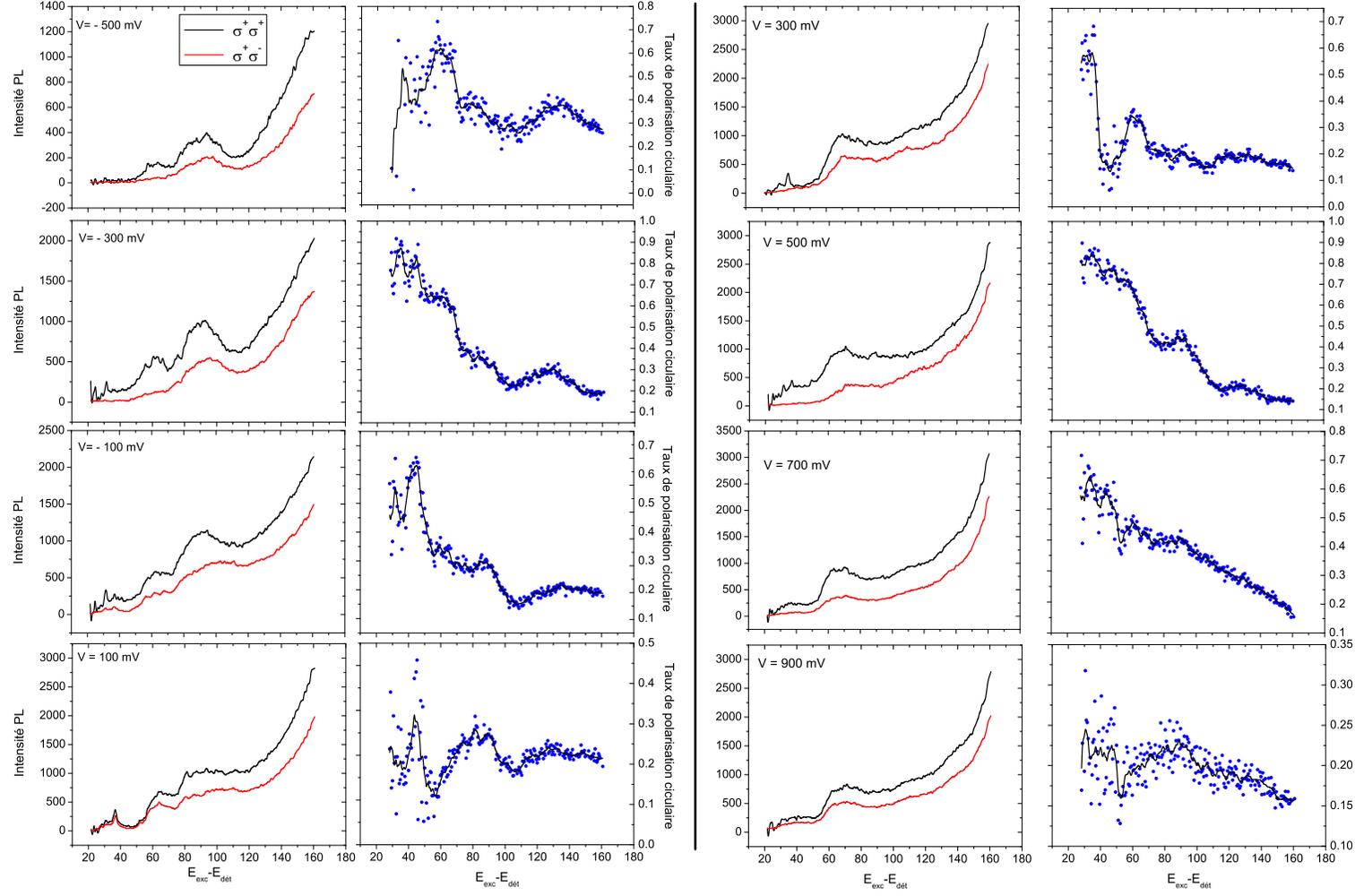


FIG. 3.1: Spectres de PLE résolus en polarisation circulaire en fonction de la tension.

tous les cas restent peu éloignés du continuum 2D associé à la couche de mouillage. Ce dernier joue d'ailleurs un rôle important pour les propriétés optiques puisqu'il donne lieu aux transitions mixtes, état confiné vers état du continuum ou inversement. C'est cependant bien cette discrétisation qui doit ralentir les processus de relaxation du spin associés aux fluctuations de l'environnement, dues par exemple à l'interaction aux phonons ou au bruit électrique au voisinage des boîtes. Pour en tirer parti, il est nécessaire de déterminer en premier lieu les conditions d'excitation qui seront les plus favorables à l'orientation optique des trions.

3.1.1 Choix de l'énergie d'excitation

Pour mettre en évidence le rôle de l'énergie d'excitation des boîtes, nous avons réalisé la spectroscopie d'excitation de la photoluminescence (PLE) résolue en polarisation circulaire [1]. Cette mesure a été faite sur un ensemble de boîtes d'un échantillon n-i-Schottky. Les boîtes observées sont à une énergie de 1.26 eV et sont excitées par le laser polarisé σ^+ . Les spectres de PLE sont reportés sur la figure 3.1. Ils ont été normalisés par la puissance d'excitation du laser qui varie avec sa longueur d'onde. Notons que le signal parasite produit par la luminescence large bande du laser (faible mais polarisée à 100%) a pu être retranché des mesures brutes grâce à un spectre pris à -1V, situation pour laquelle la luminescence de l'échantillon est complètement supprimée (c.f. Chap. 2).

Commentons tout d'abord les intensités des spectres de PLE. Pour les tensions négatives, il apparaît deux fronts d'absorption situés à une énergie Raman de 55 meV et 90 meV. On peut les interpréter comme étant liés respectivement aux transitions mixtes $CM_h \rightsquigarrow S_e$ et $CM_e \rightsquigarrow S_h$. Leur position correspond qualitativement aux prédictions théoriques d'A. Vasanelli [2]. Il se superpose, sans doute, à la première l'absorption phonon assistée à deux LO du fondamental (≈ 70 meV). Un fait remarquable est qu'à partir de la tension 300 mV correspondant au chargement de la boîte avec un électron, on ne voit plus qu'un seul front d'absorption toujours situé à 65 meV, suivi comme précédemment de l'absorption de la couche de mouillage (à +120 meV). Une interprétation possible serait que l'interaction de Coulomb avec l'électron résident déplace l'énergie des transitions $CM_h \rightsquigarrow S_e$ en l'augmentant et $CM_e \rightsquigarrow S_h$ en la diminuant ; le maximum local observé pour des tensions où l'occupation d'un électron résident est effectif, correspondrait à leur chevauchement. Notons par ailleurs que sur la plupart des spectres on peut identifier une résonance au voisinage de 36 meV correspondant à l'excitation résonnante à 1 phonon optique.

La polarisation circulaire de la luminescence en fonction de l'énergie d'excitation est reportée sur la figure 3.1, pour chaque tension. La tendance générale est que plus l'énergie d'excitation est proche du fondamental des boîtes, plus la polarisation circulaire est forte. Celle-ci atteint ainsi des valeurs extrêmement élevées de l'ordre de 85% aux tensions de +500 mV (X^-) et -300 mV (X^+) et pour des énergies d'excitation situées à moins de 40 meV de l'énergie des boîtes. En soi, ce seul résultat est très intéressant puisqu'il démontre que les états de trou fondamentaux de la boîte quantique sont bien essentiellement de type lourd. L'évolution avec l'énergie d'excitation laisse quant à elle supposer que soit des mécanismes de relaxation du spin interviennent

durant le processus de thermalisation des porteurs sur le fondamental de la boîte, soit les règles de sélection optiques sont profondément modifiées lorsque l'on s'éloigne de la transition fondamentale en raison d'une contribution progressive de niveaux trous légers. Cette dernière hypothèse est d'ailleurs conforme à l'observation d'une transition "légère" par des mesures d'absorption dans le plan des couches en polarisation TM [3]. De ces expériences, on retiendra donc qu'une excitation intra-boîte permet en général de générer des polarisations de spin très élevées des trions. A l'inverse, quand les porteurs sont photocréés essentiellement dans la couche de mouillage (1.42 eV, soit à +160 meV ici), la polarisation circulaire chute à environ 15%. On constate toutefois que pour la tension très négative de $V = -500$ mV correspondant à la fin du régime de luminescence des trions positifs avant que le signal de luminescence ne s'effondre, cette valeur remonte à 30%. Cette augmentation pourrait s'expliquer par un raccourcissement de la durée de vie des trions comparée à leur temps de vie de spin, en accord avec les mesures dynamiques discutées à la fin de ce chapitre.

Une analyse plus approfondie de cette expérience réalisée sur ensemble de boîtes s'avère délicate. Par exemple, à la tension 100 mV correspondant à la luminescence de l'exciton neutre, la polarisation circulaire est de l'ordre de 20% en excitant à l'énergie de la couche de mouillage. Ceci n'est absolument pas corroboré par l'étude sur boîte unique, où la polarisation circulaire de X^0 est essentiellement zero. L'inhomogénéité d'un ensemble de boîte autorise évidemment la coexistence d'états de charge différents et donc de telles mesures peu sélectives (malgré la sélection de l'énergie de luminescence) sur un ensemble mélangeant nécessairement différentes situations physiques.

Nous retiendrons de cette étude, qu'une excitation intra-boîte à environ 60-70 meV du fondamental des boîtes, réalise un compromis entre un fort signal de luminescence et un fort taux de polarisation circulaire de la luminescence, en particulier des trions positifs et négatifs. Dans la section suivante, nous allons analyser plus en détail le rôle de la tension électrique.

3.1.2 Influence du champ électrique

Nous avons mesuré la polarisation circulaire de la photoluminescence sous excitation polarisée circulairement d'un ensemble de boîtes en fonction de la tension appliquée aux bornes de l'échantillon n-i-Schotkky. Les résultats sont présentés sur la figure 3.2, pour une énergie d'excitation fixe située environ 70 meV au dessus du fondamental des boîtes observées.

La polarisation circulaire semble qualitativement corrélée aux différents domaines de tension qui, d'après les caractérisations électrique et en micro-photoluminescence discutées dans les deux chapitres précédents, correspondent à différents états de charge. En particulier,

- De -500 mV à -150 mV, la polarisation circulaire attribuée à la luminescence de X^+ est assez élevée, jusqu'à 45%, mais chute progressivement quand le champ diminue.
- De -150 mV à 150 mV, la polarisation circulaire n'est plus que de quelques pourcents. Ce domaine correspond vraisemblablement à celui des excitons neutres.
- De 150 mV à 350 mV, la polarisation circulaire remonte, signifiant le chargement des boîtes avec un seul électron et donc l'apparition de trions négatifs, mais toujours en concurrence avec des excitons neutres.

- De 350 mV à 600 mV, les boîtes se chargent avec deux électrons résidents et l'on observe un maximum de polarisation circulaire de $\sim 40\%$.
- Au delà de 600 mV, la polarisation circulaire chute rapidement quand des complexes plus chargés X^{n-} ($n \geq 2$) sont susceptibles de se former.

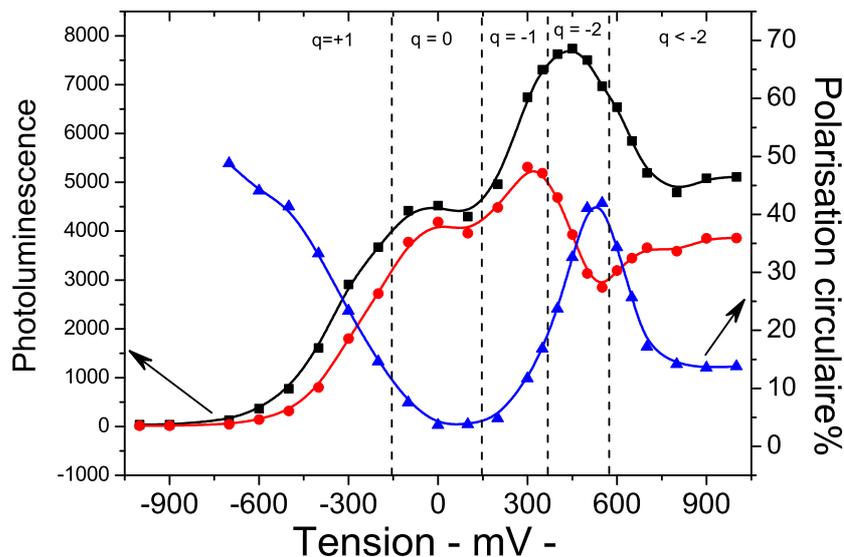


FIG. 3.2: Polarisation circulaire en fonction de la tension. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV

Ces résultats qui reproduisent évidemment l'évolution aperçue sur les spectres de PLE, révèlent le rôle central que joue la tension sur l'efficacité d'orientation optique par le biais du chargement des boîtes, lequel active ou désactive la relaxation de spin due à l'interaction électron-trou. Les mesures sur boîte uniques, présentées dans la section suivante, montreront que, dans le régime de luminescence de X^- , le champ électrique agit également sur la relaxation de spin dans la phase de relaxation des porteurs photo-créés.

3.1.3 Influence de la température

La figure 3.3 montre le déclin du maximum de la polarisation circulaire à $V=500$ mV avec la température. L'expérience a été réalisée dans les mêmes conditions que précédemment. La polarisation circulaire de X^- reste relativement élevée jusqu'à une température de ~ 50 K, puis chute définitivement à 0% pour la température de 100 K, correspondant à une énergie thermique de ~ 10 meV. Cet effet est compatible avec une énergie d'activation de la relaxation de spin des trous d'une dizaine de meV, correspondant à l'écart typique des états confinés dans la bande de valence.

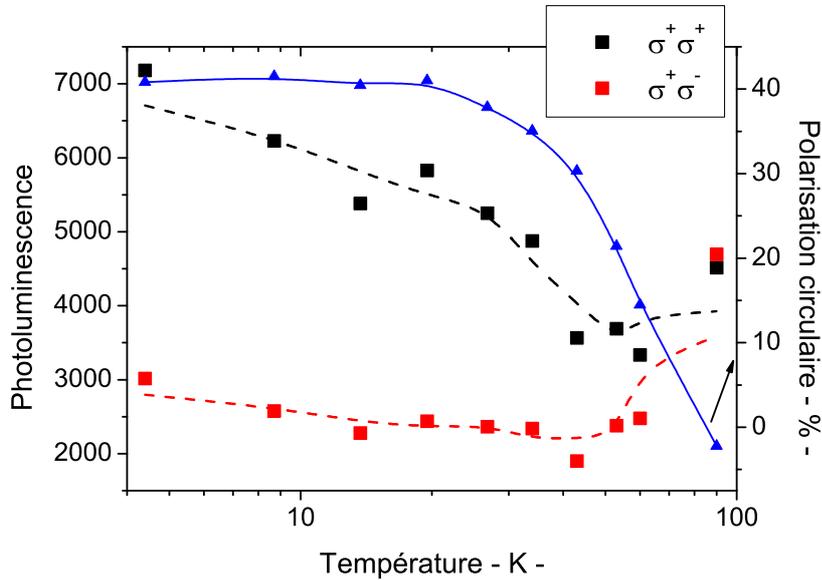


FIG. 3.3: Evolution de la polarisation circulaire en fonction de la température. $V = +500 mV$
Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV

3.2 Orientation optique dans des boîtes quantiques uniques

Dans cette section, nous allons discuter les mesures d'orientation optique sur boîtes uniques et pour différents états de charge des excitons. Nous verrons que les résultats obtenus confortent les interprétations faites sur ensemble de boîtes et permettent d'aller un cran plus loin dans la compréhension des mécanismes qui agissent sur la dynamique de spin des électrons et trous. Ces mêmes expériences seront rediscutées aux chapitres suivants, quand nous nous focaliserons sur les effets liés à l'interaction hyperfine avec les noyaux. Pour cette raison, nous ne traiterons pas ici le cas des trions positifs. Dans cette section, les résultats présentés ont été obtenus avec une excitation optique polarisée circulairement, continue et correspondant aux transitions intra-boîte. Commençons par aborder le cas des complexes excitoniques possédant une structure fine.

3.2.1 Excitons neutres et doublement chargés

3.2.1.1 Excitons neutres

La polarisation circulaire de l'exciton neutre mesurée en spectroscopie stationnaire ne peut être très forte en raison de l'interaction d'échange anisotrope électron/trou δ_1 . Si à l'instant initial $t=0$, on prépare la boîte quantique dans un état $J_z=+1$, les intensités co- et contra-polarisées sont données par :

$$I_{\pm}(t) = \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rad}}\right) \left(1 \pm \exp\left(-\frac{t}{T_c}\right) \cos\left(\frac{\delta_1}{\hbar} t\right)\right) \quad (3.1)$$

où τ_{rad} est le temps de vie radiatif et T_c le temps de cohérence pendant lequel la superposition cohérente sur les états d'exciton $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ persiste. En fait, la valeur moyenne obtenue en intégrant temporellement les intensités résolues en polarisation dépend avant tout du rapport entre durée de vie radiative τ_{rad} et période des battements quantiques δ_1/h . Pour une boîte typique caractérisée par $\delta_1 = 30 \mu eV$, $\tau_{rad} \approx 800$ ps, la polarisation circulaire de X^0 reste inférieure à 1 % quelque soit la valeur du temps de cohérence ¹. Le graphe 3.4a montre les intensités co- et contra-polarisées d'un exciton neutre, et l'on constate que la polarisation circulaire est effectivement très faible (<5%). Ce résultat est extrêmement robuste dans le sens où il a été observé sur tous les excitons neutres identifiés comme tels.

Une question adjacente à celle de la relaxation de spin dans les boîtes quantiques, est celle de la relaxation entre les deux niveaux excitoniques $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ séparés par l'interaction d'échange δ_1 . Des mesures assez indirectes tendraient à démontrer l'existence d'une relaxation très rapide entre ces niveaux, qui conduirait à égaliser les populations compte tenu de ce que kT est encore largement supérieur à δ_1 à 5 K [4]. Un tel effet serait fort ennuyeux pour les applications envisagées de ce système dans le domaine de la photonique quantique. Par ailleurs, une telle conclusion est plutôt surprenante face à nos résultats sur les trions. Pour trancher la question, on pourrait envisager des expériences d'alignement des excitons réalisées sous excitation quasi-résonnante en polarisation linéaire (par exemple excitation à 1 phonon LO) Dans le domaine temporel, mesurer directement les battements quantiques d'une boîte quantique unique comme cela a déjà pu être réalisé avec des boîtes quantiques II-VI [5] offrirait une autre mesure directe du temps de cohérence de ce système qui ne peut être supérieur au temps de relaxation.

3.2.1.2 Excitons doublement chargés

Dans le cas des complexes excitoniques deux fois chargés X^{2-} (ou X^{2+}), on s'attend en principe à une situation équivalente à celle de l'exciton neutre, en raison de l'échange anisotrope électron P/trou S (ou électron S/trou P). Une très faible polarisation circulaire est en effet constatée pour X^{2-} (voir spectres 3.4). Notons toutefois, que si un tel état se forme ou relaxe dans une configuration de moment angulaire $|J_z|=2$ pour laquelle les battements quantiques produits par l'interaction d'échange deviennent beaucoup plus lents, alors le spin du trou peut rester orienté. Cet effet a été discuté pour un système un peu différent, celui de boîtes chargées par dopage de type n des barrières, dans les références [6] et [7]. Une étude dédiée au cas des excitons doublement chargés serait manifestement souhaitable pour mettre en évidence un tel effet, mais ce point nécessite pour cela un échantillon où la formation de ce complexe est mieux contrôlée que dans ceux que nous avons étudiés.

¹Notons toutefois qu'un champ magnétique longitudinal peut assez rapidement écranter cet effet : pour un champ de seulement 50 mT, la polarisation circulaire théorique remonte à 5%. les mesures sous champ magnétiques présentées aux chapitres 5 et 6 démontrent cet effet.

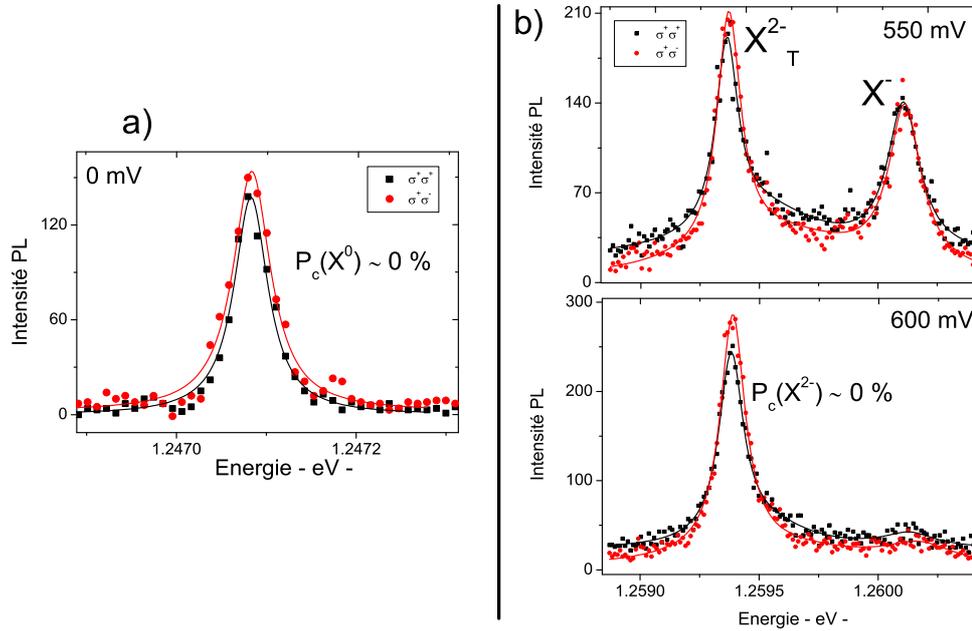


FIG. 3.4: Mise en évidence de la faible polarisation circulaire (a) d'un exciton neutre pour une excitation à 1.31 eV et (b) du complexe X^{2-} pour une excitation à 1.32 eV. On peut noter sur (b) que le trion X^- est lui aussi très peu polarisé, fondamentalement pour la même raison que X^{2-} à cette tension.

3.2.2 Trions négatifs

Du fait de la configuration singulet des deux électrons qui forment un trion négatif, la polarisation circulaire des photons émis lors de la recombinaison est en principe une mesure de l'orientation de spin du trou dans ce complexe. Nous allons voir que cette prédiction qui repose sur l'hypothèse d'un trou purement lourd (du moins pour ce qui concerne la partie optiquement active vers l'état de conduction S) est relativement bien vérifiée.

Influence du champ électrique :

La figure 3.5a montre l'évolution des spectres de la luminescence co- et contra-polarisée d'un trion négatif en fonction de la tension. A partir de 200 mV, le trion X^- apparaît et coexiste avec X^0 , indiquant que la boîte se charge avec un électron résident. Dans ce régime la polarisation circulaire de X^- est quasiment nulle (c.f 3.5a). Puis à partir de ~ 300 mV, la luminescence de X^0 disparaît et seule la raie X^- demeure, tandis que sa polarisation circulaire croît progressivement avec la tension appliquée. Cette dernière atteint un maximum proche de 70 % à ~ 450 mV, tension qui correspond aussi au maximum de luminescence de la raie X^- (non montré ici). Ensuite, la polarisation circulaire chute brutalement pour des tensions supérieures à 500 mV : la boîte quitte alors le régime de stabilité à deux électrons, pour rentrer dans le régime X^{2-} . Ceci est en assez bon accord avec les observations sur ensemble de boîtes (c.f figure 3.2).

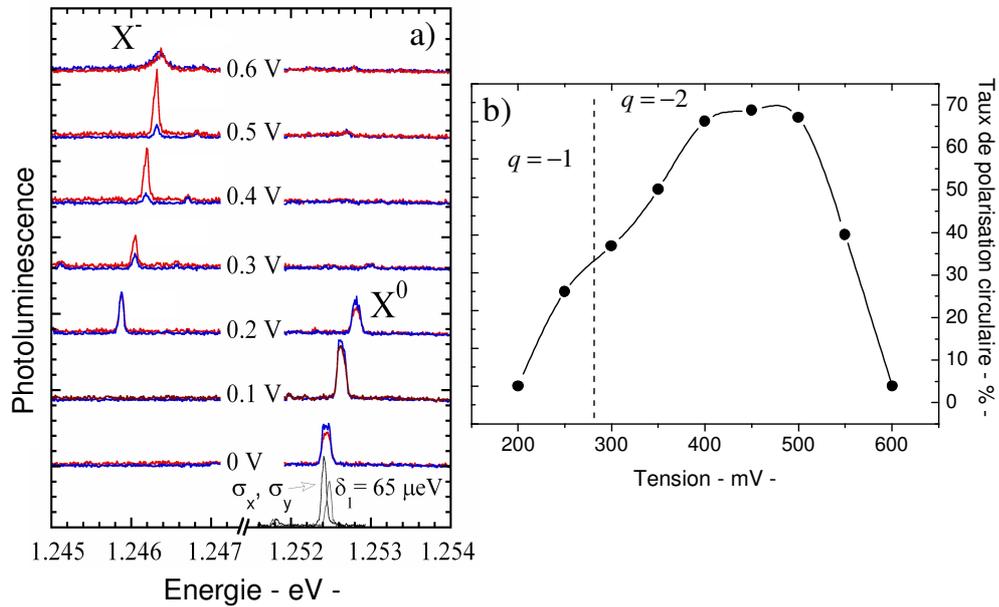


FIG. 3.5: a) Spectres de photoluminescence co- et contra-polarisée pour différentes tensions appliquées. b) Evolution du taux de polarisation circulaire. Excitation à 1.32 eV

Comme le montre le graphe 3.5b, il est assez remarquable que la valeur de la polarisation circulaire d'une même raie de luminescence de l'état X^- ait comme paramètre de contrôle la tension appliquée. Évidemment on pressent bien que former un complexe excitonique ayant un long temps de vie de spin, ne garantit pas une forte polarisation de son spin. Encore faut-il que les conditions de pompage, qui ici sont non résonnantes, assurent la formation de ce complexe avec un spin bien défini. Nous allons voir ci-dessous comment le champ électrique influence cette efficacité de pompage. Mais avant cela examinons le rôle de l'énergie d'excitation.

Influence de l'énergie d'excitation

La figure 3.6 présente pour quatre autres boîtes quantiques la polarisation circulaire de la luminescence des trions négatifs ainsi que leur intensité, en fonction de l'énergie d'excitation (en unité Raman). La tension appliquée est fixée entre 400 mV et 500 mV, correspondant au maximum de la polarisation circulaire. L'énergie de luminescence des trions se situe quant à elle autour de 1.26 eV pour les quatre boîtes. L'objectif de cette mesure était de démontrer le caractère faiblement résonnant des conditions de pompage optique du spin, et pour cette raison l'énergie d'excitation du laser était variée de manière assez discontinue. Plusieurs points sont à noter :

- (i) Les graphiques 3.6a et 3.6b sont parfaitement compatibles avec les spectres de PLE réalisés sur ensemble de boîtes : l'excitation à environ 60 meV au dessus de l'énergie de luminescence observée, correspond à une forte absorption et à une forte polarisation circulaire.

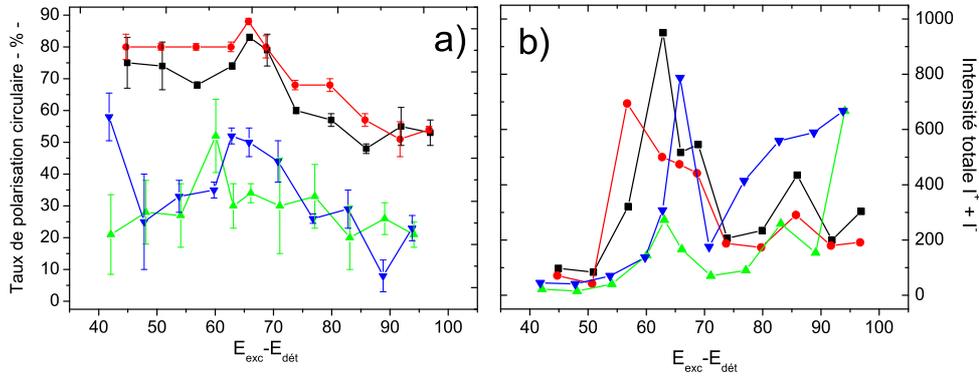


FIG. 3.6: Etude de quatre trions X^- a) Polarisation circulaire en fonction de l'énergie d'excitation. b) Intensité totale ($V = +500 mV$)

- (ii) On voit clairement que la fenêtre d'excitation pour obtenir une forte excitation de la luminescence n'est pas très sélective ($60 mV \pm 10 meV$) : ceci conforte l'idée que cet intervalle d'énergie d'excitation correspond à une transition mixte faisant intervenir un continuum.
- (iii) De plus, la forte polarisation circulaire constatée pour certaines raies X^- pourrait vraisemblablement laisser penser à la transition mixte $S_h \rightsquigarrow CM_e$, où le trou est directement photocréé sur l'état confiné de la boîte quantique². Si ce scénario n'était pas le bon, il faudrait alors invoquer une thermalisation du trou sur l'état fondamental de la boîte sans relaxation du spin, ce qui peut sembler difficile à concevoir si le trou est créé plusieurs dizaines de meV au dessus. Par ailleurs pour les tensions voisines de 500 mV, il est possible d'exclure la transition $CM_h \rightsquigarrow S_e$, puisqu'elle est bloquée par l'occupation de la boîte par deux électrons.

Interprétation

Nous allons maintenant analyser deux cas limites de la formation des trions afin de comprendre comment la tension électrique est susceptible de contrôler l'efficacité de l'orientation optique des trions.

Considérons pour commencer le seuil en tension auquel apparaît le trion X^- et qui se caractérise par une polarisation circulaire essentiellement nulle. Dans ce régime, la boîte est chargée avec un seul électron résident, que l'on peut légitimement supposer comme non polarisé. Comme nous l'avons vu précédemment l'excitation optique à environ 60 meV au dessus du fondamental, crée un trou S_h de spin orienté et un électron dans le continuum CM_e . Ce dernier peut soit s'échapper, auquel cas la boîte peut émettre un photon dans l'état X^0 avant qu'un électron ne revienne du

²Il est vrai que pour deux des trions étudiés, la polarisation circulaire reste modeste. Il est probable que le masque optique altère la polarisation si la boîte n'est pas centrée par rapport au trou laissé par la micro-bille. A 500 mV, les raies de luminescence observées en dehors d'une telle ouverture exhibent un taux de polarisation proche de 100% sous certaines conditions d'excitation et de tension.

réservoir, soit relaxer sur le fondamental pour former le trion X^- (*c.f.* schéma 3.7 cas $N = 1$). La coexistence des raies de luminescence X^0 et X^- indique que le temps de thermalisation du trion doit finalement être du même ordre de grandeur que le temps de vie radiatif de l'exciton neutre $\sim 1 \text{ ns}$, donc relativement long. Pendant ce processus de thermalisation, le trou photocréé est susceptible de perdre son orientation initiale par l'interaction d'échange anisotrope avec les deux électrons non appariés en singulet sur le fondamental, ou bien plus simplement avec l'électron laissé seul dans la boîte. Le second cas particulier à considérer est celui du régime à deux

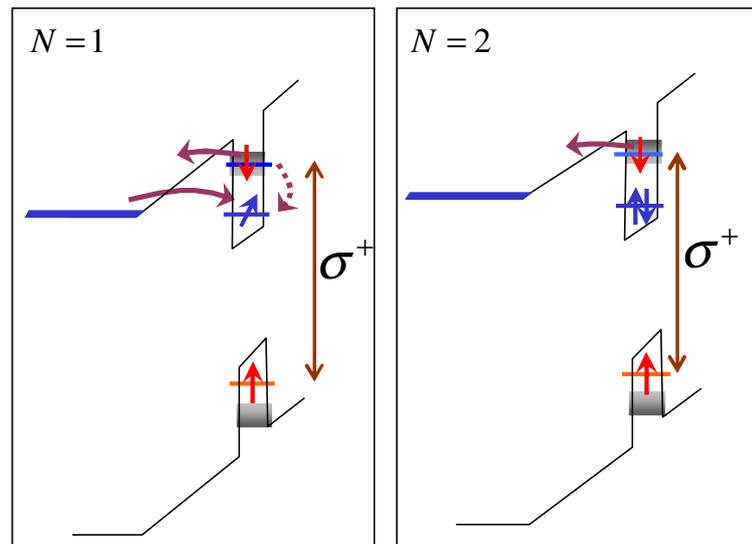


FIG. 3.7: Processus de thermalisation du trion négatif dans le cas d'un électron résident ($N = 1$) puis de deux électrons résidents ($N = 2$)

électrons résidents correspondant à la tension $V \approx 0.5 \text{ V}$ (*c.f.* schéma 3.7 cas $N = 2$). Dans ce cas, le temps de thermalisation du trion photocréé avec un électron sur un niveau P ou dans le continuum de la couche de mouillage, n'est plus limité que par l'échappement de cet électron "chaud" qui, tant que le champ électrique demeure assez fort, peut être très rapide ($\sim \text{qq ps}$). L'interaction d'échange du trou avec les deux électrons dans une configuration singulet de spin étant nulle, on comprend que le spin du trou garde alors son orientation initiale.

Pour les tensions intermédiaires, le temps de thermalisation du trion diminue en augmentant la tension, ce qui a pour conséquence de limiter de plus en plus l'action de l'interaction d'échange anisotrope électron/trou, qui est bloquée dès que X^- a relaxé sur son état fondamental. C'est pourquoi nous observons une croissance continue de la polarisation circulaire avec la tension de grille. De la même manière, augmenter la tension au delà de 500 mV ralentit le processus d'échappement de l'électron chaud et de ce fait ouvre un canal de relaxation du spin du trou par interaction d'échange avec cet électron.

Le rôle fondamental de l'interaction d'échange anisotrope est souligné dans l'expérience suivante (figure 3.8). Pour la même boîte quantique, nous avons tracé l'évolution de la polarisation

circulaire en fonction de la tension, avec et sans un champ magnétique longitudinal de 0.2 T. Les conditions expérimentales (puissance et énergie d'excitation) ont été conservées pour les deux configurations.

Manifestement, les résultats mettent en évidence deux régimes. Entre 200 mV et 350 mV, plage

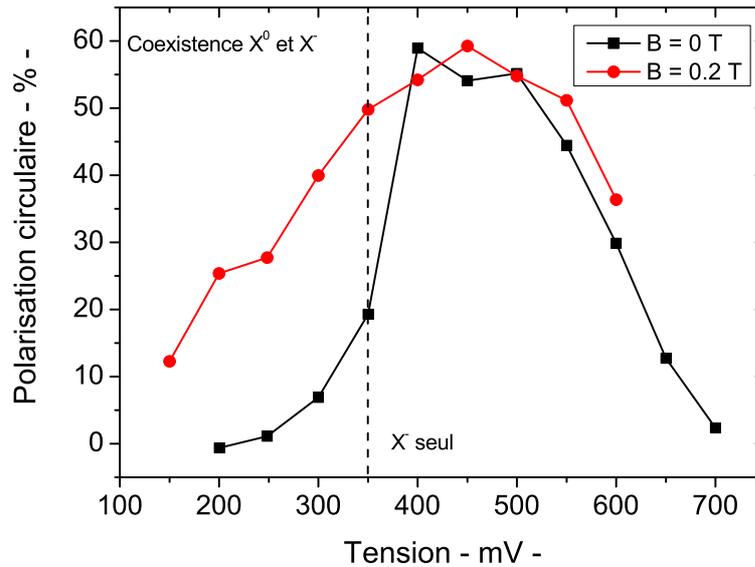


FIG. 3.8: Evolution de la polarisation circulaire de X^- avec et sans champ magnétique longitudinal. Détection à 1.26 eV, excitation à 1.34 eV.

de tension pour laquelle il y a une luminescence simultanée des raies X^0 et X^- , la polarisation circulaire du trion négatif est nettement plus forte sous champ magnétique. Le champ magnétique longitudinal diminue l'amplitude des battements quantiques entre les états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$, car la séparation par effet Zeeman de ces niveaux d'environ $28 \mu\text{eV}$ commence à écranter appréciablement leur couplage par l'interaction d'échange anisotrope δ_1 mesurée pour cette boîte à $45 \mu\text{eV}$. Au delà de 400 mV, la polarisation circulaire à $B = 0.2 \text{ T}$ rejoint la polarisation déjà élevée en l'absence de champ, indiquant que la relaxation par l'interaction d'échange anisotrope est déjà essentiellement bloquée par la thermalisation "instantanée" du trion.

Les mécanismes énoncés au dessus décrivent qualitativement assez bien la dépendance de la polarisation circulaire du trion négatif avec la tension. Comme cette phénoménologie est observée aussi bien sur boîtes uniques et que sur ensemble de boîte, nous avons entrepris d'effectuer des mesures résolues en temps de la photoluminescence et de sa polarisation sur un ensemble de boîtes. L'objectif est de valider l'hypothèse que la relaxation de spin des trous pour les trions négatifs est essentiellement bloquée à l'échelle du temps de vie radiatif.

3.3 Dynamique de la polarisation circulaire photo-induite

Les expériences de photoluminescence résolue en temps ont été réalisées sur un banc relativement classique de macro-photoluminescence. Un laser Ti :Saphir à verrouillage de mode délivre des impulsions optiques picosecondes avec un taux de répétition de 82 MHz. L'énergie d'excitation intra-boîte est choisie à 1.34 eV et le signal de photoluminescence sélectionné à 1.27 eV par un simple monochromateur est détecté par une "streak" caméra synchronisée sur la fréquence de répétition du laser. Compte tenu de la faible intensité de luminescence pour une excitation intra-boîte, la collection du signal est dispersée sur toute l'ouverture angulaire du monochromateur limitant la résolution temporelle à environ 60 ps. Comme pour la spectroscopie d'un ensemble de boîtes on a pu tirer parti de l'extinction totale du signal de photoluminescence à la tension de -1 V pour supprimer des spectres bruts tout signal parasite comme la forte diffusion du laser aux temps courts.

3.3.1 Blocage de la relaxation de spin du trou dans les trions X^-

Nous allons commenter la dynamique de la luminescence en fonction de la tension. Pour $V = -100$ mV (*c.f* spectre 3.9), la polarisation circulaire chute à zéro, en un temps typique inférieur à la centaine de picosecondes (masqué par la diffusion du laser). A cette tension, la luminescence est majoritairement due à la recombinaison radiative des excitons neutres. L'interaction d'échange anisotrope électron/trou explique cette chute de polarisation en un temps court en raison du brouillage des battements quantiques de chacune des boîtes quantiques produit par la distribution inhomogène des splittings associés [8]. Le déclin de l'intensité de luminescence montre quant à lui un comportement bi-exponentiel avec un temps long de plusieurs ns³ qui serait la signature d'une population d'excitons noirs, lesquels contribuent faiblement mais sur une longue échelle de temps au signal de luminescence. La formation de cette population d'excitons noirs a été récemment discutée en termes d'effet Kondo haute température associé au couplage avec le réservoir d'électrons pour des mesures sur un échantillon de boîtes quantiques tout à fait similaire au notre [9].

Pour $V = +300$ mV (*c.f* spectre 3.10), le régime de luminescence est plus complexe puisqu'il y a coexistence des états X^0 et X^- . Contrairement à la tension précédente, la polarisation intégrée temporellement est proche de 15 %. Celle-ci augmente continûment jusqu'à la tension de +500 mV. On note que cette polarisation est quasiment constante au cours du temps, ce qui est bien accord avec notre modèle précédent. Une fois que les trions négatifs ont relaxé sur le fondamental, ce qui est vraisemblablement le cas après 100 ps, comme en témoigne le signal de photoluminescence, leur polarisation de spin reste inchangée durant le temps de vie radiatif. Dans le régime de tension où le trion négatif est formé "directement" dans son état fondamental ($V = +500$ mV), la dynamique de la polarisation circulaire montre un profil assez différent comme l'illustre la figure 3.11. La polarisation moyennée temporellement vaut 45 %, valeur encore une fois compatible

³Un signal aux temps négatifs correspondant à un délai effectif de 7 ns environ est en fait clairement visible sur les images de la streak caméra.

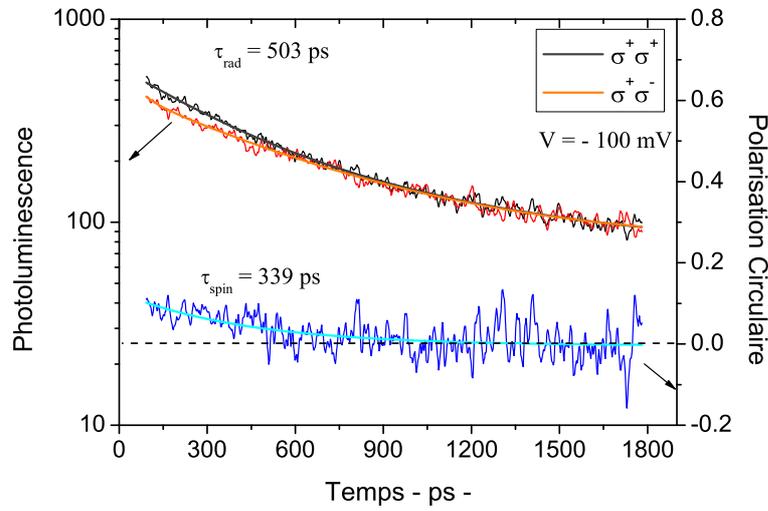


FIG. 3.9: Spectres de photoluminescence résolus en temps pour $V = -100$ mV. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV. τ_{spin} fait uniquement référence au déclin au temps courts. Il en sera de même pour tous les graphiques montrant la dynamique de la polarisation circulaire.

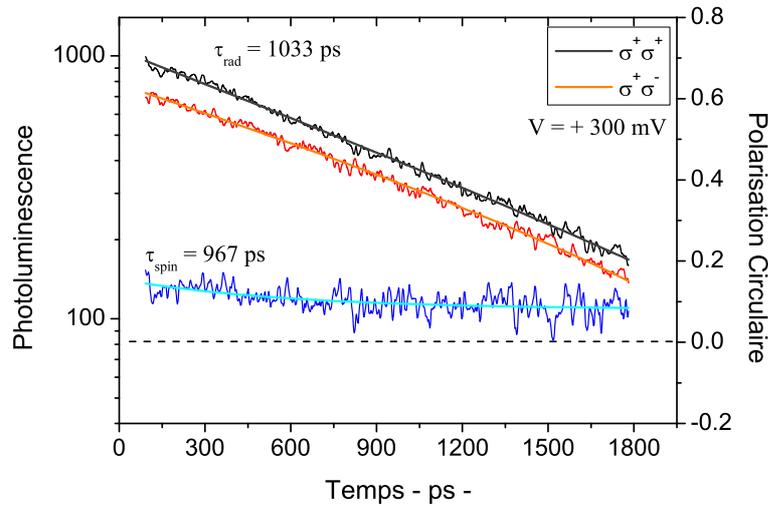


FIG. 3.10: Spectres de photoluminescence résolus en temps pour $V = +300$ mV. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV.

avec les mesures stationnaires. La dynamique de la polarisation montre d'abord un déclin partiel sur les 500 premières picosecondes qui peut être attribué à la fraction de boîtes pour lesquelles la formation du trion par échappement de l'électron chaud est déjà ralentie, voire même bloquée donnant lieu alors à des excitons doublement chargés X^{2-} . Toujours est-il qu'un plateau de polarisation persistant aux temps longs est clairement visible et directement imputable aux trions négatifs créés dans l'état $J_z = +3/2$ par le pompage optique σ^+ . Il n'est pas possible de mesurer

la durée de vie de cette polarisation de spin étant donné que la mesure est limitée à environ 2ns, mais une estimation raisonnable déduite d'un "fit" bi-exponentiel donne une valeur supérieure à 20 ns pour le temps de vie du spin des trous dans cette configuration.

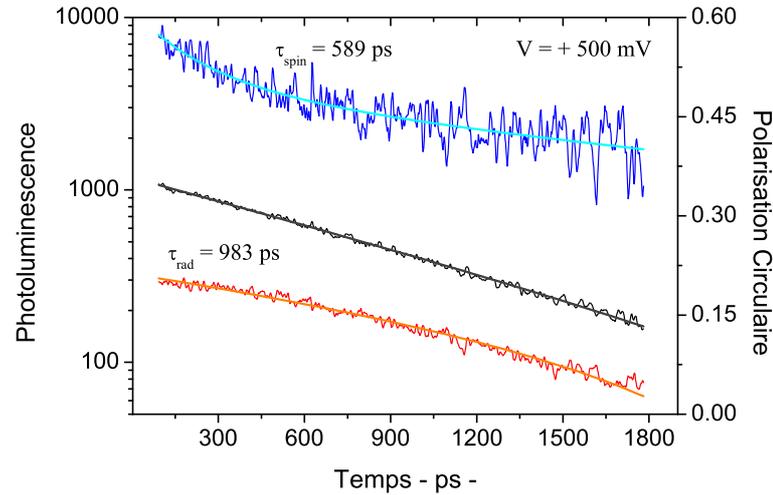


FIG. 3.11: Spectres de photoluminescence résolus en temps pour $V = +500$ mV. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV.

En soi, c'est un résultat tout à fait frappant qui contraste nettement avec la situation des matériaux massifs ou même des puits quantiques pour lesquels le temps de vie de spin des trous est inférieur à 10 ps. Cet effet résulte directement du confinement quantique 0D et de son caractère fortement anisotrope : l'état fondamental de valence de type trou lourd se trouve isolé de plusieurs dizaines de meV des niveaux de trous légers. Renverser un moment angulaire de $+3/2$ à $-3/2$ apparaît dans ces conditions comme un processus extrêmement peu efficace. Pour cette même raison (moment angulaire $3/2$) l'interaction hyperfine qui n'est pas strictement nulle pour les trous s'avérerait tout à fait inefficace pour la relaxation de spin puisqu'elle ne permet pas de coupler des états de moments cinétiques orbitaux différents. Ce n'est pas le cas pour les électrons comme nous allons en avoir un aperçu dans la section suivante.

Poursuivons d'abord avec l'évolution de la dynamique de polarisation aux tensions plus élevées quand la structure approche du régime de bandes plates. Dans ce cas, la luminescence est préférentiellement attribuée aux complexes chargés X^{2-} et plus généralement X^{n-} avec $n \geq 2$. Pour une tension de 800 mV, la polarisation circulaire est caractérisée par un déclin rapide qui révèle l'action du terme d'échange anisotrope entre un ou plusieurs électron(s) sur un niveau P ou dans le continuum de la couche de mouillage et le trou S (c.f figure 3.12). Pour autant, la polarisation initiale est tout à fait appréciable, ce qui démontre bien que le trou est toujours créé optiquement sur un niveau profond de la boîte avec un spin bien défini. En fin de luminescence, la polarisation circulaire est nulle ce qui illustre une situation très différente de celle observée à 300 mV, où la polarisation moyenne était en fait tout à fait comparable.

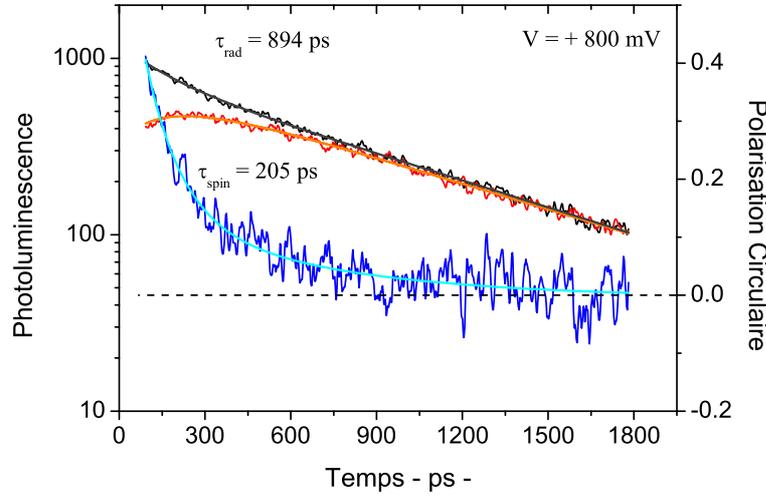


FIG. 3.12: Spectres de photoluminescence résolus en temps pour $V = +800$ mV. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV.

3.3.2 Relaxation du spin des électrons pour les trions X^+

Le mécanisme de formation du trion positif pour une excitation intra-boîte résulte de la capture d'un premier trou, sans lequel l'électron ne pourrait être stabilisé et s'échapperait sous l'effet du champ électrique. Comme on l'a vu pour les boîtes uniques un exciton neutre ne peut pas coexister (d'un point de vue statistique) avec un trion positif dès lors que le champ électrique est suffisamment fort : l'électron s'échappe pour laisser un trou, ou alors un second photon est absorbé et c'est le biexciton ainsi créé qui se transforme en trion positif. On peut donc légitimement admettre que sous un champ assez fort on ne récolte plus que la luminescence de trions positifs. Dans ces conditions, le terme d'échange anisotrope n'agit plus, comme dans le cas des trions négatifs, que pendant la relaxation sur son niveau fondamental de l'électron photocréé jusqu'à la formation d'un trion X^+ . Cette phase de la relaxation qui s'étend sur quelques dizaines de ps tout au plus n'apparaît pas sur nos mesures qui débutent à un délai de 100 ps. La dynamique de la polarisation circulaire de X^+ qui s'ensuit reflète alors celle du spin électronique, en présence des deux trous. Le suivi temporel de la luminescence est montré sur la figure 3.13, pour une tension appliquée de -300 mV. Comme attendu pour ce régime de tension où le champ électrique est fort, le temps de vie de la luminescence devient relativement court, montrant que celle-ci est en compétition avec le processus non radiatif d'échappement tunnel des porteurs. La polarisation de la photoluminescence intégrée redonne la valeur de 20 %, en accord avec les résultats de la figure 3.2.

La polarisation circulaire résolue en temps révèle une dynamique très différente de celle des trions négatifs. Elle se caractérise par un déclin partiel en un temps $T_{\Delta} \approx 450$ ps, suivi d'un plateau qui sort difficilement du bruit mais que l'on peut estimer à environ 10%, soit $\approx 1/3$ de la valeur initiale obtenue en prolongeant l'approximation exponentielle du déclin à $t=0$. Ce comportement très particulier pourrait être la signature de l'interaction hyperfine sur la

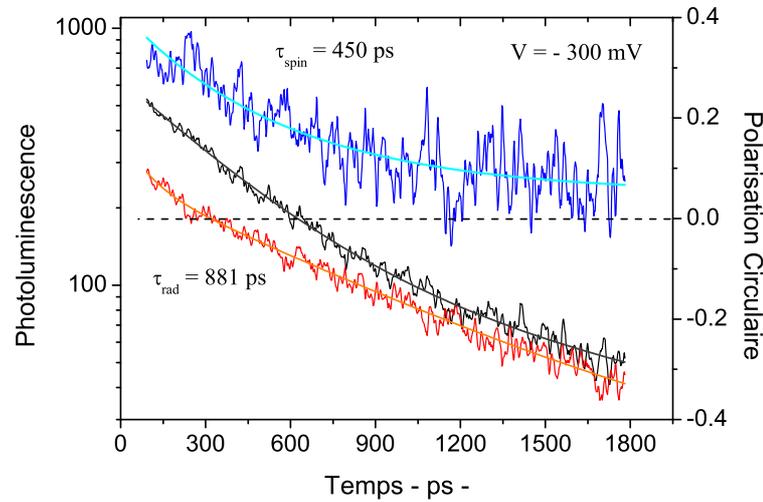


FIG. 3.13: Spectres de photoluminescence résolus en temps pour $V = -300$ mV. Détection à 1.27 eV, excitation à 1.34 eV.

dynamique de spin électronique d'un ensemble de boîtes comme cela a été prédit en 2002 par I. A. Merkulov *et al.* [10]. Notons qu'une cinétique de polarisation tout à fait comparable à celle montrée ici a été obtenue en 2005 pour un ensemble de boîtes avec un dopage de type p par P.-F. Braun *et al.* [11], expérience que nous commenterons plus en détail au chapitre 6. Notons cependant tout de suite que la théorie de I. A. Merkulov *et al.* prédit pour les boîtes d'InGaAs une relaxation de spin partielle au tiers de sa valeur initiale avec un temps caractéristique compris entre 100 ps et 1 ns.

3.4 Bilan

La convergence des études réalisées sur boîtes uniques et sur ensemble de boîtes en fonction de la charge électrique a permis dans ce chapitre de bien identifier les mécanismes qui gouvernent l'orientation optique dans les boîtes quantiques. Nous avons mis en évidence la quasi-absence de mécanisme de relaxation du spin du trou, lorsque l'interaction d'échange est supprimée, faisant de ce dernier un candidat alternatif aux électrons pour la réalisation d'opérations quantiques avec des spins. De plus, le contrôle électrique de la relaxation du spin du trou a été démontré : la tension contrôlant le temps de thermalisation du trion X^- sur son état fondamental, permet de "pondérer" l'action du terme d'échange anisotrope électron/trou, jusqu'à le rendre inopérant quand la boîte est chargée avec deux électrons résidents.

Les trois chapitres qui vont suivre s'attaquent principalement à la physique de l'interaction hyperfine qui semble jouer un rôle important pour la dynamique du spin électronique dans les boîtes quantiques. Dans le dernier de ces chapitres, nous verrons que la mise en parallèles des observations menées sur ensemble de boîtes et sur boîtes uniques, mets en lumière le rôle majeur

de ce couplage hyperfin, déjà entr'aperçu ici, sur la relaxation du spin électronique dans une boîte quantique.

Bibliographie

- [1] S. Laurent. PhD thesis, Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques InAs/GaAs, 2004.
- [2] Angela Vasanelli. *Transitions Optiques Interbandes et Intrabandes Dans la Boîte Quantique Simple et Couplées Verticalement*. PhD thesis, ENS Ulm, 2002.
- [3] S. Cortez, O. Krebs, , P. Voisin, and J. M. Gérard. Polarization of the interband optical dipole in inas/gaas self-organized quantum dots. *Phys. Rev. B*, 63 :233306, 2001.
- [4] I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Couteau, J. P. Poizat, and J. M. Gérard. Fast exciton spin relaxation in single quantum dots. *Phys. Rev. B*, 71 :233304, 2005.
- [5] T. Flissikowski, I. A. Akimov, A. Hundt, , and F. Henneberger. Single-hole spin relaxation in a quantum dot. *Phys. Rev. B*, 68 :161309(R), 2003.
- [6] S. Laurent, M. Senes, O. Krebs, V. K. Kalevich, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, , and P. Voisin. Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled inas/gaas quantum dots under nonresonant optical excitation. *Phys. Rev. B*, 73 :235302, 2006.
- [7] V. K. Kalevich, I. A. Merkulov, A. Yu. Shiryayev, K. V. Kavokin, M. Ikezawa, T. Okuno, P. N. Brunkov, A. E. Zhukov, V. M. Ustinov, , and Y. Masumoto. Optical spin polarization and exchange interaction in doubly charged inas self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, 72 :45325, 2005.
- [8] M. Sénès, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, J. Tribollet, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, and J.-M. Gérard. Exciton spin manipulation in inas/gaas quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects. *Phys. Rev. B*, 71 :115334, 2005.
- [9] J.M Smith, P.A. Dalgarno, R.J. Warburton, A.O. Govorov, K. Karrai, B.D. Gerardot, and P.M Petroff. Voltage control of the spin dynamics of an exciton in a semiconductor quantum dot. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 94(197402), 2005.
- [10] I.A Merkulov, Al.L Efros, and M. Rosen. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Physical review B*, 65(205309), 2002.
- [11] P-F Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, P. Renucci, V.K Kalevich, K.V Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto. Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Physical Review Letter*, 94(116601), 2005.

Chapitre 4

Interaction hyperfine dans les semiconducteurs

Sommaire

4.1	Introduction	79
4.2	Dynamique des spins nucléaires dans les semiconducteurs III-V	80
4.2.1	Interaction hyperfine avec les électrons	80
4.2.2	Couplage dipolaire entre noyaux	84
4.2.3	Approche thermodynamique de la polarisation des spins nucléaires	87
4.2.4	Une interaction duale	90
4.3	Mise en évidence de la polarisation nucléaire : des semiconducteurs massifs aux boîtes quantiques	92
4.3.1	Expériences révélant le champ Overhauser	92
4.3.2	Expériences types et résultats quantitatifs	93

4.1 Introduction

Dans les années 1970-1980, le pompage optique des spins nucléaires dans les semiconducteurs a fait l'objet d'études poussées aussi bien sur le plan théorique (M. D'yakonov)[1] que sur le plan expérimental, avec notamment les travaux de D. Paget et G. Lampel [2, 3].

Ces derniers ont clairement mis en évidence des effets nucléaires associés aux électrons localisés sur des donneurs, en faible concentration, dans des semiconducteurs massifs. Le confinement de la fonction d'onde électronique est un paramètre crucial ; en effet si l'électron est délocalisé dans le cristal, le transfert de moment angulaire sur chaque site nucléaire tend vers zéro. Pour mettre en évidence un effet de polarisation nucléaire, l'électron doit interagir avec un nombre limité de noyaux. Pour les impuretés hydrogénéoïdes dans un semiconducteur massif étudiées par D. Paget et G. Lampel, le volume d'interaction électron/noyaux est défini par le rayon de Bohr $a_B \sim 10$ nm englobant donc quelques 10^5 noyaux. En comparaison, l'électron confiné dans une boîte quantique auto-assemblée d'InAs/GaAs interagit avec un nombre de spins nucléaires

de même ordre de grandeur. La différence principale se situe sur la polarisation moyenne des électrons photocréés $\langle S_e \rangle$; on s'attend légitimement à ce que les effets de polarisation nucléaire soient proportionnels au "terme de pompage", c'est-à-dire à la polarisation moyenne des spins électroniques $\langle S_e \rangle$. Comparons cette grandeur dans les deux systèmes. Dans les semiconducteurs massifs, les mécanismes de relaxation de spin sont extrêmement efficaces, la polarisation circulaire de la luminescence dans les conditions de pompage optique orienté¹ est $P_c = |\langle S_e \rangle| \sim 1\%$, alors que pour les boîtes quantiques d'InAs, les mécanismes de relaxation du spin électronique sont gelés et l'on peut obtenir assez facilement $P_c = 2|\langle S_e \rangle| \geq 50\%$. En conséquence, la polarisation nucléaire atteinte dans les semiconducteurs massifs reste un phénomène d'intensité très faible et les boîtes quantiques semblent réaliser un système prometteur pour atteindre une polarisation nucléaire forte. A cet égard, mentionnons que des propositions théoriques ont été avancées pour coder l'information quantique sur les spins nucléaires de boîtes quantiques [4, 5, 6].

Par ailleurs, l'observation d'objets uniques va se révéler fort appréciable puisqu'elle donnera une information directe sur la polarisation nucléaire via la mesure du déplacement (ou "shift") Overhauser ainsi que sur celle des électrons par l'analyse de la Photoluminescence. Ceci constitue une différence majeure par rapport aux études antérieures sur les matériaux massifs, ou principalement les effets "indirects" du couplage hyperfin sur la relaxation du spin électronique étaient observables.

Dans ce chapitre, nous allons nous focaliser sur les effets nucléaires dans le régime stationnaire, c'est-à-dire que nous considérerons uniquement les paramètres qui décrivent l'état stationnaire du système couplé (électron+noyaux). Nous verrons au chapitre 6 que les fluctuations des configurations de spin nucléaire participent à un nouveau mécanisme de relaxation du spin électronique.

4.2 Dynamique des spins nucléaires dans les semiconducteurs III-V

4.2.1 Interaction hyperfine avec les électrons

Dérivation de l'Hamiltonien hyperfin [7] Considérons un noyau particulier de la matrice semiconductrice ainsi qu'un électron délocalisé. Ces deux particules portent un moment dipolaire magnétique associé à leur spin²; la structure interne du noyau joue ici un rôle négligeable, on peut donc considérer le moment magnétique nucléaire comme un dipôle rigide³.

$$\hat{\mu}_e = \hbar\gamma_e\hat{S} = -2\mu_B\hat{S} \quad (4.1)$$

$$\hat{\mu}_I = \hbar\gamma_I\hat{I} = \mu_I\frac{\hat{I}}{I} \quad (4.2)$$

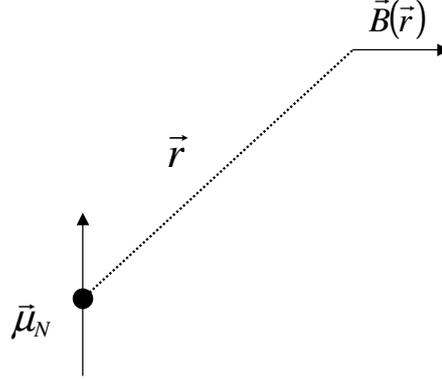
¹en champ magnétique nul

²le semiconducteur considéré ici est différent du silicium qui ne porte pas de spin nucléaire.

³l'approximation d'ordre supérieure consisterait à considérer la distribution de charge interne au noyau.

où γ_k est le rapport gyromagnétique de la particule considérée et \hat{S} , \hat{I} sont les opérateurs de spin respectivement de l'électron et du noyau ; μ_B est le magnéton de Bohr et μ_I le magnéton nucléaire du noyau considéré.

Nous allons établir ici l'Hamiltonien d'interaction du champ magnétique induit par le dipôle nucléaire sur le moment magnétique de l'électron⁴.



L'électromagnétisme classique donne le potentiel vecteur associé au dipôle rigide et donc le champ en tout point de l'espace :

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{\mu}_I \times \vec{r}}{r^3} = \frac{\mu_0}{4\pi} \text{Rot}\left(\frac{\vec{\mu}_I}{r}\right) \quad (4.3)$$

et

$$\vec{B} = \text{Rot}(\vec{A}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \text{Rot}\left[\text{Rot}\left(\frac{\vec{\mu}_I}{r}\right)\right] \quad (4.4)$$

soit

$$\vec{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left(-\vec{\mu}_I \Delta\left(\frac{1}{r}\right) + \nabla(\vec{\mu}_I \cdot \nabla)\left(\frac{1}{r}\right) \right) \quad (4.5)$$

Dans ce champ l'énergie d'interaction avec le moment dipolaire magnétique de l'électron vaut $-\vec{\mu}_e \cdot \vec{B}$ ce qui donne l'expression suivante pour l'Hamiltonien d'interaction électron-noyau en fonction des opérateurs de moment dipolaire magnétique :

$$\hat{H} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left\{ \frac{2}{3} \hat{\mu}_e \cdot \hat{\mu}_I \Delta\left(\frac{1}{r}\right) - [(\hat{\mu}_e \cdot \nabla)(\hat{\mu}_I \cdot \nabla) - \frac{1}{3} \hat{\mu}_I \cdot \hat{\mu}_e \Delta]\left(\frac{1}{r}\right) \right\} \quad (4.6)$$

Pour $r \neq 0$, $\Delta\left(\frac{1}{r}\right) = 0$ l'Hamiltonien se réduit donc à l'interaction hyperfine dipôle-dipôle :

$$r \neq 0, \hat{H} = \hat{W}_{dip} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{\hat{\mu}_e \cdot \hat{\mu}_I r^2 - 3(\hat{\mu}_e \cdot \hat{r})(\hat{\mu}_I \cdot \hat{r})}{r^5} \right] \quad (4.7)$$

En $r = 0$, $\Delta\left(\frac{1}{r}\right) = -4\pi\delta(\vec{r})$ l'interaction possède une singularité. Celle-ci est physique puisque contrairement au dipôle classique *i.e* une boucle de courant d'extension finie, les moments magnétiques associés au spin ne résultent pas d'une distribution spatiale de courants. Cette

⁴Ce calcul a été fait par T. Fermi en 1930

singularité en $r = 0$ est portée par le premier terme de l'équation 4.6 qui est appelé interaction de contact de Fermi :

$$\hat{W}_{contact} = -\frac{2\mu_0}{3}\hat{\mu}_e \cdot \hat{\mu}_I \delta(\vec{r}) \quad (4.8)$$

L'interaction de contact moyenne est obtenue en intégrant sur tout l'espace occupé par l'électron :

$$\langle \Psi_e | \hat{W}_{contact} | \Psi_e \rangle = - \int \Psi_e^*(\vec{r}) \frac{2\mu_0}{3} \hat{\mu}_e \cdot \hat{\mu}_I \delta(\vec{r}) \Psi_e(\vec{r}) r^2 dr d\Omega \quad (4.9)$$

Il vient immédiatement :

$$\langle \Psi_e | \hat{W}_{contact} | \Psi_e \rangle = -\frac{8}{3}\pi\mu_0 |\Psi_e(0)|^2 \hat{\mu}_e \cdot \hat{\mu}_I \quad (4.10)$$

A partir de la relation 4.10, on définit l'Hamiltonien hyperfin entre un spin nucléaire et un spin électronique que l'on peut écrire sous forme d'un Hamiltonien d'Heisenberg, en remplaçant les opérateurs moments magnétiques par les opérateurs de spin :

$$\hat{H}_{h.f.} = a |\Psi_e(0)|^2 \hat{S} \cdot \hat{I} \quad (4.11)$$

$$\text{où } a = \frac{16}{3I} \pi \mu_0 \mu_I \mu_B$$

Dans le cristal semiconducteur, la fonction d'onde électronique est représentée par le produit d'une fonction enveloppe $\psi_e(\vec{r})$ lentement variable à l'échelle de la maille élémentaire et d'une partie de Bloch $u(\vec{r})$ (c.f. Chap.1) :

$$\Psi_e(\vec{r}) = \psi_e(\vec{r}) u(\vec{r}) \quad (4.12)$$

En raison de la symétrie p de la partie de Bloch décrivant les états de valence, l'interaction hyperfine de contact est en principe négligeable pour ces états. En revanche, la symétrie s de la partie de Bloch des états de conduction va exalter le recouvrement de la fonction d'onde sur le site atomique, si bien que seuls les électrons de conduction interagissent notablement avec les noyaux via l'interaction de contact.

Reformulation de l'Hamiltonien hyperfin dans une approche de champ moyen

En prenant comme condition de normalisation de la partie de Bloch $\int_{v_0} |u(\vec{r})|^2 d^3\vec{r} = v_0$ où v_0 est le volume de la cellule unité, on introduit la constante hyperfine A normalisée sur la cellule unité. Les variations de $|\psi_e(\vec{r})|^2$ étant négligeables sur une distance $\sqrt[3]{v_0}$, on obtient :

$$\hat{H}_{h.f.} = v_0 A |\psi_e(0)|^2 \hat{S} \cdot \hat{I} \quad \text{avec} \quad A = \frac{16\pi}{3I} \frac{\mu_0 \mu_B \mu_I}{v_0} \eta \quad (4.13)$$

où $\eta = |u(0)|^2$ est l'amplitude de la partie de Bloch sur le site atomique. La valeur de A dépend donc du choix de la cellule unité. Dans la structure Zinc-blende, elle contient conventionnellement deux atomes.

Quelques propriétés remarquables de $\hat{H}_{h.f.}$:

- L'Hamiltonien hyperfin est scalaire, de sorte que la somme $I_z + S_z$ des projections des deux spins le long de l'axe de quantification est conservée (voir Ref. [8] p. 994). Le spin nucléaire moyen I_z ne sera modifié d'une unité que par un échange simultané avec celui de l'électron.
- Les valeurs du paramètres η sont globalement du même ordre de grandeur dans tous les semiconducteurs III – V.

Site atomique	η_i/v_0 en cm^{-3}
Ga dans GaAs	$5.8 \cdot 10^{25}$
As dans GaAs	$9.8 \cdot 10^{25}$
In dans InSb	$9.25 \cdot 10^{25}$
Sb dans InSb	$15.9 \cdot 10^{25}$

TAB. 4.1: D'après [2] et [9]. Dans un cristal, la fonction $|u(\vec{r})|^2$ des électrons de conduction est très piquée sur les sites atomiques, ce qui conduit à $\eta/v_0 \gg 1$.

- L'intensité du couplage hyperfin quantifiée par la valeur de la constante hyperfine A dépend du paramètre nucléaire $\frac{\mu_I}{I}$. On remarque sur le tableau 4.2.1 que ce ratio possède une valeur voisine de 1 pour la plupart des semiconducteurs III/V ; comme les η_i ont tous le même ordre de grandeur, les valeurs des constantes hyperfines sont faiblement dispersées et valent environ $50\mu eV$ (pour une cellule unité à 2 atomes) :
Ces valeurs sont quasiment indépendantes de la variété isotopique [2].
- Le signe de μ_i détermine la nature du couplage ferro ou anti-ferromagnétique ; étant positif pour les III/V, le couplage hyperfin est de nature antiferromagnétique.
- Tous les noyaux des semiconducteurs III/V portent un spin non nul (ils ont tous un nombre de nucléons impairs), ce n'est pas le cas des semiconducteurs II/VI où seuls quelques isotopes d'un même élément possède un moment dipolaire magnétique. Le cas du Cadmium en est l'illustration : seuls les isotopes 111 et 113 ayant une abondance totale de 25% ont un spin nucléaire. Il en résulte de manière générale que les effets hyperfins sont plus intenses dans les semiconducteurs III/V que dans les II/VI.

Noyau	A^i en μeV
Ga dans GaAs	43
As dans InAs	47
In dans InAs	56

TAB. 4.2: Les données sont issues de [10]

	natural abundance[%]	I	μ_I
^9Be	100	3/2	-1.1776
^{10}B	19.78	3	+1.8007
^{11}B	80.22	3/2	+2.6885
^{13}C	1.11	1/2	+0.7024
^{14}N	99.63	1	+0.4036
^{15}N	0.37	1/2	-0.2831
^{27}Al	100	5/2	+3.6414
^{29}Si	4.70	1/2	-0.5553
^{31}P	100	1/2	+1.1317
^{33}S	0.76	3/2	+0.6433
^{67}Zn	4.11	5/2	+0.8754
^{69}Ga	60.4	3/2	+2.016
^{71}Ga	39.6	3/2	+2.562
^{73}Ge	7.76	9/2	-0.8792
^{75}As	100	3/2	+1.439
^{77}Se	7.58	1/2	+0.534
^{111}Cd	12.75	1/2	-0.5943
^{113}Cd	12.26	1/2	-0.6217
^{113}In	4.28	9/2	+5.523
^{115}In	95.72	9/2	+5.534
^{115}Sn	0.35	1/2	-0.918
^{117}Sn	7.16	1/2	-1.000
^{119}Sn	8.58	1/2	-1.046
^{121}Sb	57.25	5/2	+3.359
^{123}Sb	42.75	7/2	+2.547
^{123}Te	0.87	1/2	-0.7357
^{125}Te	6.99	1/2	-0.8871
^{199}Hg	16.84	1/2	+0.5027
^{201}Hg	13.22	3/2	-0.5567
^{207}Pb	22.6	1/2	+0.5895
^{209}Bi	100	9/2	+4.080

FIG. 4.1: Abondance naturelle, spin nucléaire I , et moment magnétique μ_I des isotopes de matériaux ou alliages semiconducteurs. Les valeurs de μ_I sont données en unité de magnéton nucléaire $\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p}$ où m_p est la masse du proton. D'après " American Institute of Physics Handbook, Third Edition, McGraw-Hill,1972

Terminons cette introduction en revenant sur le terme dipolaire hyperfin donné par l'équation 4.6. Ce terme "longue portée" couple le spin nucléaire et le spin de l'électron quand ce dernier n'est pas localisé sur le même site atomique que le noyau considéré. Mais il est aussi légitime de penser qu'il peut coupler le spin nucléaire au spin du trou de la bande de valence puisqu'alors la symétrie de la fonction n'intervient plus ici. Il faut le comparer avec la valeur de A . Pour une distance noyau/électron de l'ordre du rayon de Bohr, l'énergie d'interaction dipolaire hyperfin est de l'ordre de $\sim 0.1\mu\text{eV}$ soit 500 fois plus faible que l'énergie de contact hyperfin.

4.2.2 Couplage dipolaire entre noyaux

Après avoir donné quelques ordres de grandeur sur le couplage hyperfin {électron-noyau}, nous allons nous intéresser au système de spins nucléaires seul. La dynamique intrinsèque de ce

dernier doit en effet être considérée pour comprendre, dans sa globalité, les mécanismes fins de la polarisation nucléaire. Il est usuel de décrire un tel système de spins nucléaires par sa température (ou température réciproque). Celle-ci doit déterminer la valeur moyenne du spin $\langle I_z \rangle$ acquise à l'équilibre dans un champ magnétique externe B_z causé par l'effet Zeeman sur les noyaux. En l'absence d'interaction mutuelle entre les spins nucléaires, il est clair que les noyaux ne peuvent acquérir de polarisation finie : chacun des spins effectuerait une précession "éternelle" autour du champ magnétique sans s'aligner le long du champ. L'interaction motrice de cette orientation des spins va être l'interaction dipôle-dipôle qui va permettre de redistribuer l'énergie à l'intérieur de ce système. Cette interaction joue donc un rôle primordial pour comprendre nombre des effets qui vont être décrits plus loin. C'est elle entre autre qui fournit le temps caractéristique T_2 du déclin de la polarisation nucléaire en champ nul. Elle définit aussi le champ magnétique effectif local B_L que ressent un noyau particulier au sein du cristal semiconducteur. L'ordre de grandeur de T_2 est alors donné par la période de précession de Larmor des spins nucléaires dans ce champ local et vaut typiquement $100 \mu\text{s}$. Dans une expérience de refroidissement de spin par désaimantation adiabatique ⁵ c'est ce champ local qui sert de référence pour redéfinir une température lorsque le champ externe est coupé. Le point qui peut paraître un peu troublant est que ce champ n'ayant pas de direction privilégiée, conduit inexorablement à une disparition de la polarisation nucléaire dans un temps $\sim T_2$ (en l'absence de champ externe) quand bien même la température de spin reste très basse. Pour finir de décrire l'évolution d'un système de spins nucléaires, on introduit donc le temps T_1 qui est celui du retour à la température du réseau ; ce temps de relaxation s'avère être extrêmement long, allant de la seconde à plusieurs jours. Il dépend fortement de la température du réseau et de la concentration d'impuretés paramagnétiques. Dans une large mesure, on peut donc considérer les spins nucléaires comme découplés du réseau et on peut se contenter de prendre en compte l'interaction dipôle-dipôle entre noyaux pour décrire la dynamique de ce système sur une échelle de temps inférieure à la seconde.

Pour un ensemble de spins nucléaires, l'Hamiltonien dipolaire s'écrit sous la forme :

$$\hat{H}_{dip} = \sum_{i < k} \hat{W}_{ik} = \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{i < k} \frac{\hbar^2 \gamma_i \gamma_k}{r_{jk}^3} \{ \hat{I}_j \cdot \hat{I}_k - 3 \frac{(\hat{I}_j \cdot \hat{r}_{jk})(\hat{I}_k \cdot \hat{r}_{jk})}{r_{jk}^2} \} \quad (4.14)$$

Ordre de grandeur : L'énergie caractéristique du couplage dipolaire entre deux noyaux 1 et 2 est de l'ordre de : $\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\mu_I^2}{r_{12}^3}$. Pour le GaAs, le moment magnétique le plus fort est celui de ^{71}Ga qui vaut $2.562 \mu_N$ ⁶ et la distance entre deux plus proches sites est 0.24 nm ; ce qui donne une énergie d'interaction de $7.6 \cdot 10^{-6} \mu\text{eV}$. Le spin nucléaire 1 précesse dans le champ dipolaire de son voisin (2), $B_{dip} \sim 0.15 \text{ mT}$ avec une période de précession $T_2 \sim 10^{-4}$ seconde. B_{dip} donne une estimation du champ local B_L sur un noyau particulier, induit par le proche voisinage.

⁵Expérience qui consiste à couper brutalement le champ magnétique appliqué à un cristal dans lequel, par pompage optique, on est parvenu à générer une forte polarisation de spin nucléaire. Les populations des différents sous-niveaux Zeeman restant tout d'abord inchangées, on aboutit à une température de spin extrêmement basse de l'ordre de 10^{-6} K , laquelle est définie par le rapport de la polarisation nucléaire initiale au champ local B_L .

⁶ $\mu_N \sim 0.03 \mu\text{eV}/T$

Examinons plus en détail le couplage dipolaire entre deux spins nucléaires \hat{I} et \hat{I}' séparés de \vec{r} . En introduisant les angles polaires θ et φ qui définissent la position relative des deux dipôles, cette interaction se met sous la forme d'une somme de termes :

$$\hat{W}_{ii'} = \frac{\hbar^2 \gamma_i \gamma_{i'}}{r^3} \{ \hat{A} + \hat{B} + \hat{C} + \hat{D} + \hat{E} + \hat{F} \} \quad (4.15)$$

où

$$\begin{aligned} \hat{A} &= \hat{I}_z \hat{I}'_z [1 - 3 \cos^2(\theta)] \\ \hat{B} &= \frac{1}{2} [1 - 3 \cos^2(\theta)] [\hat{I}_z \hat{I}'_z - \hat{I} \cdot \hat{I}'] \\ \hat{C} &= \hat{D}^* = -\frac{3}{2} \sin(\theta) \cos(\theta) e^{i\varphi} [\hat{I}_z \hat{I}'_- + \hat{I}'_z \hat{I}_+] \\ \hat{E} &= \hat{F}^* = -\frac{3}{4} \sin^2(\theta) e^{2i\varphi} \hat{I}_+ \hat{I}'_+ \end{aligned}$$

Ces termes agissent de manière différente sur les états de spin nucléaire suivant qu'ils respectent la symétrie sphérique ou non. En introduisant les valeurs propres m et m' des opérateurs \hat{I}_z et \hat{I}'_z ainsi que leur somme M ; on peut dresser un tableau des règles de sélection pour chacun de ses termes :

A	$\Delta m = 0$	$\Delta m' = 0$	$\Delta M = 0$
B	$\Delta m = \pm 1$	$\Delta m' = \mp 1$	$\Delta M = 0$
C	$\Delta m = \begin{Bmatrix} 0 \\ 1 \end{Bmatrix}$	$\Delta m' = \begin{Bmatrix} 1 \\ 0 \end{Bmatrix}$	$\Delta M = 1$
D	$\Delta m = \begin{Bmatrix} 0 \\ -1 \end{Bmatrix}$	$\Delta m' = \begin{Bmatrix} -1 \\ 0 \end{Bmatrix}$	$\Delta M = -1$
E	$\Delta m = 1$	$\Delta m' = 1$	$\Delta M = 2$
F	$\Delta m = -1$	$\Delta m' = -1$	$\Delta M = -2$

Il apparaît donc clairement que l'interaction dipolaire ne conserve pas le moment angulaire total : les opérateurs \hat{A} et \hat{B} conservent le spin total alors que \hat{C} , \hat{D} , \hat{E} , \hat{F} mélangent les états propres de \hat{I}_z . Par conséquent les états de spin selon l'axe de quantification z ne sont plus les états propres de \hat{I}_z . En absence de champ magnétique, le couplage dipolaire entre proches voisins entraîne donc une dépolarisation d'un ensemble de spins sans coût énergétique. Le spin moyen s'annule dans le temps caractéristique T_2 .

Appliquons maintenant un champ magnétique suivant z . Le champ local peut alors se décomposer en une composante selon z B_L^{\parallel} et une composante perpendiculaire au champ extérieur B_L^{\perp} . Si le champ magnétique extérieur est tel que $B \gg B_L \sim 0.15mT$, il peut alors "écranter" B_L^{\perp} qui devient trop faible pour induire à un rythme soutenu des transitions entre les sous niveaux Zeeman nucléaires. Néanmoins, la composante de champ B_L^{\parallel} subsiste et peut donner lieu à un mécanisme de dépolarisation activé par les fluctuations temporelles du champ externe B_z .

4.2.3 Approche thermodynamique de la polarisation des spins nucléaires

Nous allons établir maintenant la relation fondamentale entre la polarisation nucléaire et la polarisation de spin électronique. La démarche suivie ici s'inspire largement de la présentation faite par M. D'yakonov et V. I. Perel dans l'ouvrage de référence *Optical Orientation* [1].

Dans un premier temps, nous nous plaçons dans la situation où le champ magnétique appliqué au système {électrons + noyaux} est grand devant le champ local B_L . De plus, on suppose que la température de spins nucléaires est bien supérieure à une température critique T_c où les interactions d'échange entre spins nucléaires induiraient un ordre ferromagnétique ou anti-ferromagnétique. Le système nucléaire se réduit donc à un réseau paramagnétique et le spin nucléaire moyen suit la loi de Curie qui dans l'approximation des hautes températures ($\frac{\langle \mathbf{I} \rangle}{T} \ll 1$) se linéarise pour donner :

$$\langle \mathbf{I} \rangle = \frac{1}{3}(I + 1) \frac{\mu_I \mathbf{B}}{k_B T_N} \quad (4.16)$$

Nous allons raisonner sur les deux systèmes de spin en interaction :

(i) le réservoir de spins électroniques. Il est couplé au réseau cristallin considéré comme un thermostat imposant sa température T

(ii) le réservoir associé aux spins des noyaux, couplés uniquement aux spins électroniques.

(Comme discuté ci dessus on se place à une échelle de temps courte devant T_1)

Les variables internes de ces réservoirs, à savoir l'ensemble des $\{\hat{S}^i\}$ et $\{\hat{I}^j\}$ sont libres de fluctuer et doivent être décrites par une distribution statistique. Cependant, nous considérons ici que ces 2 systèmes sont constitués d'un très grand nombre de particules pour que les fluctuations relatives en $\frac{1}{\sqrt{N}}$ soient négligeables. Ce passage à la limite thermodynamique ne sera pas immédiat pour les boîtes quantiques constituées de 10^4-5 noyaux et contenant un seul électron. En particulier, on verra que les fluctuations jouent un rôle important à l'égard des mécanismes de relaxation [10, 11].

Quand on ne "branche" pas le couplage hyperfin, le réservoir des électrons est caractérisé par la température du thermostat T et un spin moyen $\langle S_T \rangle$ alors que celui des noyaux l'est par sa température T_N et son spin moyen $\langle I_{T_N} \rangle$.

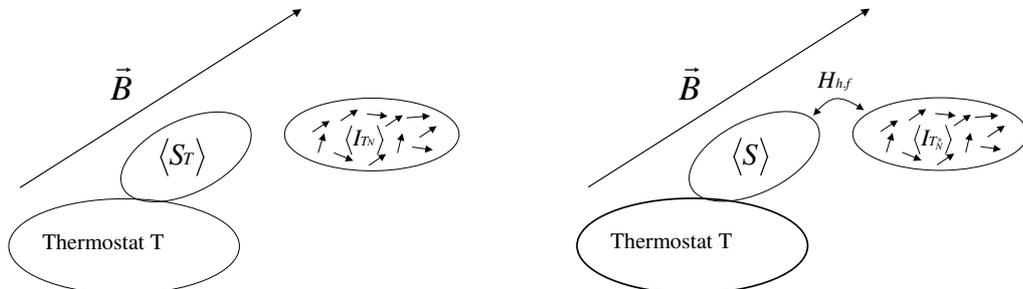


FIG. 4.2: Représentation des différents réservoirs avec et sans couplage hyperfin.

Branchons le couplage électrons/noyaux. L'interaction hyperfine conservant le spin total, un transfert de spin est alors possible entre les deux systèmes. Le réservoir des électrons est toujours

à la température T mais le spin moyen une fois l'équilibre atteint est maintenant noté $\langle S \rangle$. De même le réservoir des noyaux est à la température T_N^* et le spin moyen nucléaire devient $\langle I_{T_N^*} \rangle$, noté simplement $\langle I \rangle$ par la suite.

En régime stationnaire, le bilan détaillé correspondant au transfert de spin entre les différentes populations s'écrit [12] :

$$W_{(m,-) \rightarrow (m-1,+)} N_m n_- = W_{(m-1,+) \rightarrow (m,-)} N_{m-1} n_+ \quad (4.17)$$

où m est la projection du spin nucléaire sur la direction du champ magnétique appliqué ; $n_{\pm} = \frac{1}{2} \pm \langle S \rangle$ est la population des électrons de spin up (+) et down (-) respectivement ; N_m est la population des spins nucléaires du niveau m et enfin $W_{A \rightarrow B}$ est la probabilité de transition de A vers B qui représentent les configurations de spin (m, \pm) . Cette probabilité de transition est reliée à l'Hamiltonien hyperfin $\hat{I} \cdot \hat{S}$ qui peut se décomposer en deux termes :

$$\hat{I}_z \hat{S}_z + \underbrace{\frac{1}{2} (\hat{I}_+ \hat{S}_- + \hat{I}_- \hat{S}_+)}_{\hat{H}_{f,f}}$$

Le premier terme, qui couple les composantes de spin parallèles au champ B ne produit qu'un déplacement des niveaux d'énergie sans modifier les populations N_m ou n_{\pm} . C'est lui qui produira le shift Overhauser des niveaux électroniques qui peut être mesuré expérimentalement. Le deuxième terme de l'Hamiltonien, dit "flip-flop" ou terme d'échange, couple les opérateurs de création et annihilation des deux spin. Il est à l'origine du transfert de moment angulaire entre l'électron et le noyau. Le taux de transitions par unité de temps W est proportionnel au module carré de l'élément de matrice flip-flop $|\langle m, s | \hat{H}_{f,f} | m', s' \rangle|^2$. Ces transitions ont lieu entre des niveaux d'énergie différente (dans le champ magnétique externe). En conséquence, les probabilités associées obéissent à la relation suivante :

$$W_{(m,-) \rightarrow (m-1,+)} = e^{\frac{-\Delta E}{k_B T}} W_{(m-1,+) \rightarrow (m,-)} \quad (4.18)$$

où ΔE est l'écart en énergie des deux niveaux $(m, -)$ et $(m-1, +)$ et la température T qui intervient ici est celle du thermostat qui libère ou reçoit l'énergie nécessaire aux transitions. On peut légitimement considérer qu'il s'agit de celle du réseau qui est très efficacement couplé au bain d'électrons. Notons par ailleurs que le splitting Zeeman nucléaire est négligeable devant celui des électrons. On ne retient donc que la contribution électronique, soit $\Delta E = g_e \mu_B B$. En remarquant que le facteur de Boltzman traduit aussi le rapport des populations électroniques up et down quand le réservoir électronique est indépendant du réservoir nucléaire, c'est à dire $\langle S_T \rangle = -\frac{1}{2} \tanh(\frac{g_e \mu_B B}{2k_B T})$ on obtient la relation suivante :

$$\frac{\frac{1}{2} + \langle S \rangle}{\frac{1}{2} - \langle S \rangle} \times \frac{\frac{1}{2} - \langle S_T \rangle}{\frac{1}{2} + \langle S_T \rangle} = \frac{N_m}{N_{m-1}} \equiv e^{\frac{\mu_I B}{k_B T_N^*}} \quad (4.19)$$

L'expression 4.19 définit la température de spin nucléaire T_N^* en présence du champ magnétique B par le rapport des populations sur les différents niveaux. On voit ici que tout écart à

l'équilibre thermodynamique du réservoir des électrons, *i.e* $\langle S \rangle \neq \langle S_T \rangle$, résulte en une température de spin nucléaire finie qui traduit bien un transfert de spin vers les noyaux. En pratique, c'est le pompage optique du spin électronique qui permet de réaliser la condition $\langle S \rangle \neq \langle S_T \rangle$ et le champ magnétique externe restant généralement modeste, on peut la plupart du temps négliger la population à l'équilibre thermodynamique $\langle S_T \rangle$ devant $\langle S \rangle$. Maintenant on peut calculer le spin nucléaire moyen $\langle I \rangle$ à l'aide de la fonction de Brillouin B_I pour un spin I :

$$\langle I \rangle = IB_I \left(\frac{\mu_I B}{k_B T_N^*} \right) \quad (4.20)$$

Dans l'hypothèse des hautes températures de spin nucléaire ($\langle I \rangle / I \ll 1$) la fonction de Brillouin se linéarise pour donner à l'ordre le plus bas en $\langle S \rangle$: ^{7,8}

$$\langle I \rangle = \frac{4}{3} I(I+1) \langle S \rangle = \frac{I(I+1)}{S(S+1)} \langle S \rangle \quad (4.21)$$

ou encore

$$\langle I \rangle = Q \langle S \rangle \quad \text{avec} \quad Q = \frac{I(I+1)}{S(S+1)} \quad (4.22)$$

Le facteur Q pour une population de spins nucléaires $3/2$ vaut 5. Q étant largement supérieur à l'unité, la relation 4.21 est bien valide uniquement dans le régime des hautes températures de spins nucléaires, c'est-à-dire $\langle I \rangle \ll I$: pour s'en convaincre, si $\langle S \rangle = 1/2$, alors $\langle I \rangle = 5/2$, ce qui est impossible pour une population de spins $3/2$. Une autre remarque qualitative peut être faite : à $\langle S \rangle$ constant, la polarisation nucléaire est d'autant plus forte que Q est grand. Concrètement, cela signifie que si l'on polarise les noyaux d'une matrice inhomogène en composition, le noyau de plus fort spin contribue majoritairement à la polarisation nucléaire moyenne ; ce serait par exemple, le cas de l'Indium (spin $9/2$) dans la matrice d' $In_x Ga_{1-x} As$ où les noyaux de Gallium et d'Arsenic possèdent des spins plus petits $3/2$ ⁹. Ceci étant, il est clair que l'équation 4.21 décrit uniquement le régime stationnaire et ne prend pas en compte les différents temps caractéristiques du problème. Nous aborderons plus loin cette question pour intégrer la dynamique de la polarisation des noyaux au chapitre 5, section 2.

De manière plus générale, $\langle \vec{S} \rangle$ n'est pas nécessairement orienté suivant le champ magnétique appliqué. La relation précédente se généralise facilement puisque seule la composante $\langle S \rangle_{\vec{B}}$ participe à l'établissement de la polarisation des noyaux, d'où

$$\langle \vec{I} \rangle = Q \frac{(\langle \vec{S} \rangle \cdot \vec{B}) \vec{B}}{B^2} \quad (4.23)$$

⁷L'hypothèse des hautes températures de spin nucléaire suppose que l'argument de la fonction de Brillouin $B_I(x)$ est petit devant l'unité

⁸Sans négliger $\langle S_T \rangle$ devant $\langle S \rangle$, le résultat serait $\langle I \rangle = Q(\langle S \rangle - \langle S_T \rangle)$

⁹Toutefois, cette conclusion ne tient pas compte des effets quadripolaires qui peuvent être source de dépolarisation importante dans un champ externe faible.

Maintenant, considérons que le champ extérieur est de l'ordre du champ local B_L , ne permettant plus de négliger ce dernier. La relation 4.23 ne prend pas en compte le couplage dipolaire noyau-noyau, qui conduit comme on l'a vu plus haut à une dépolarisation des noyaux. Pour prendre en compte cet effet, on peut écrire l'équation cinétique, de manière phénoménologique, décrivant la compétition entre la polarisation induite par l'interaction hyperfine et devant aboutir à 4.21 et la dépolarisation provoquée par l'interaction dipolaire [13] :

$$\frac{d\langle I \rangle_{\vec{B}}}{dt} = -\frac{1}{T_{1e}} [\langle I \rangle_{\vec{B}} - Q\langle S \rangle_{\vec{B}}] - \frac{1}{T_{depol}} \langle I \rangle_{\vec{B}} \quad (4.24)$$

où on l'a introduit deux temps caractéristiques T_{1e} et T_{depol} . A. Abragam a montré qu'en absence de toute autre interaction $\frac{T_{1e}}{T_{depol}} = \xi \left(\frac{B_L}{B}\right)^2$ [7]. En régime stationnaire on obtient alors :

$$\boxed{\langle \vec{I} \rangle = Q \frac{(\langle \vec{S} \rangle \cdot \vec{B}) \vec{B}}{B^2 + \tilde{B}_L^2}} \quad (4.25)$$

où le champ \tilde{B}_L est défini par $\tilde{B}_L^2 = \xi B_L^2$ et ξ est un coefficient proche de l'unité caractérisant la nature exacte de l'interaction entre noyaux [2]. La relation 4.25 montre le résultat important que les noyaux ne peuvent pas être polarisés si le champ appliqué est très inférieur au champ local dipolaire. Dans la pratique, il doit suffir cependant d'appliquer un champ de quelques mT pour écranter ce dernier.

Nous venons de voir ici une première approche théorique, montrant que l'écart à l'équilibre de la population des spins électroniques "pilote" la polarisation nucléaire. Cependant, cette description consistant à considérer un réservoir électronique et un réservoir nucléaire qui s'échangent des quantas de moment angulaire semble pouvoir s'appliquer difficilement au cas d'une boîte quantique. Concrètement, il va falloir définir correctement les valeurs moyennes pour la boîte quantique de $\langle I_z \rangle$ et $\langle S_z \rangle$ et leur couplage à un thermostat. Pour $\langle I_z \rangle$ on peut assez naturellement considérer la moyenne d'ensemble des spins nucléaires de la boîte : $\langle I_z \rangle = \sum_j \frac{\langle I_z^j \rangle_N}{N}$, mais pour $\langle S_z \rangle$ le problème est clairement plus délicat.

4.2.4 Une interaction duale

Il est très commode de considérer l'interaction hyperfine en terme de champs magnétiques effectifs. Cependant comme des particules différentes sont en jeu (1 électron et N noyaux), il est nécessaire d'introduire deux champs effectifs :

- (i) le champ nucléaire ou Overhauser \vec{B}_n , qui traduit l'interaction des N noyaux sur l'électron.

$$\hat{H}_{h.f.} = -\hat{\mu}_S \hat{S} \cdot \vec{B}_n = g_e \mu_B \hat{S} \cdot \vec{B}_n \quad \text{avec} \quad \vec{B}_n = \frac{v_0 \sum_j A_I^j |\psi_e(\vec{r}_j)|^2 \langle \hat{I}^j \rangle}{g_e \mu_B} \quad (4.26)$$

Si la polarisation nucléaire est nulle, le champ Overhauser l'est aussi.

(ii) le champ Knight qui est le champ magnétique effectif que produit l'électron sur le noyau considéré.

$$\hat{H}_{h.f.} = - \sum_j \mu_I \hat{I}^j \cdot \vec{B}_e^j \quad \text{avec} \quad \vec{B}_e^j = - \frac{\nu_0 A^j |\psi_e(\vec{r}_j)|^2 \langle S \rangle}{\mu_I} \quad (4.27)$$

Étant donné que $|\frac{g_e \mu_B}{\hbar \gamma_I}| \sim 500$, le champ Knight est plus de deux ordres de grandeur inférieur au champ Overhauser. De plus, il y a une différence de "nature" entre ces deux champs venant du fait que l'électron interagit avec N spins nucléaires tandis qu'un noyau "voit" un unique électron. D'ailleurs, le champ Knight est inhomogène à l'échelle de variation de la fonction d'onde électronique : chaque noyau ressent un champ effectif différent de son voisin du fait de la modulation du couplage par le poids de la fonction d'onde au carré.

Champ nucléaire sous pompage optique [1]

On peut estimer ce champ par sa contribution moyenne en considérant que la fonction enveloppe de l'électron est normalisée sur le volume $V = N/2\nu_0$ contenant l'ensemble des N noyaux [2]. L'équation 4.26 devient :

$$\vec{B}_n = \frac{1}{g_e \mu_B} \sum_j 2A^j \frac{\langle I^j \rangle}{N} \quad (4.28)$$

En général, la somme dans 4.28 porte sur plusieurs espèces nucléaires α . L'hypothèse d'uniformité de la fonction d'onde conduit en fait à une polarisation uniforme de chacune de ces espèces isotopiques. Ainsi, en introduisant la fraction moyenne x_α de l'espèce α dans le semiconducteur, on aboutit à une relation un peu plus simple :

$$\vec{B}_n = \frac{2}{g_e \mu_B} \sum_\alpha x_\alpha A_\alpha \langle I^\alpha \rangle \quad (4.29)$$

En utilisant l'équation 4.25, le champ Overhauser résultant de l'interaction hyperfine avec des électrons de spin moyen $\langle S \rangle$ vaut :

$$\vec{B}_n = \frac{2}{g_e \mu_B} \left(\sum_\alpha x_\alpha A_\alpha Q_\alpha \right) \frac{\langle S \rangle B^2}{B^2 + \tilde{B}_L^2} \quad (4.30)$$

Champ Knight

Pour estimer le champ Knight qui affecte un noyau particulier, il suffit en principe de préciser la valeur moyenne du spin électronique $\langle S \rangle$ qui agit sur ce noyau. Dans le cas d'un semiconducteur massif ou d'un puits quantique la densité d'électrons doit donc intervenir. Dans le cas des noyaux atomiques d'une boîte quantique unique, l'estimation de $\langle S \rangle$ nécessite de prendre en compte la fraction du temps f_l qu'un électron passe sur un niveau l de la boîte quantique lequel est décrit par la fonction enveloppe ψ_l . En considérant le cas particulier, où seul l'état fondamental de la boîte est notablement peuplé par un électron polarisé en spin, le champ Knight vu par le noyau j s'exprime simplement par :

$$\vec{B}_e^j = -2 \frac{A^j \langle S \rangle}{\mu_I N} \quad (4.31)$$

Nous pouvons donner un ordre de grandeur de ce champ Knight. Pour une boîte quantique constituée de $\sim 10^5$ atomes, $A^j \sim 50 \mu\text{eV}$ et un spin moyen $\langle S \rangle \sim 0.1$, on obtient $B_e \sim 2$ mT. Ce résultat est assez remarquable puisqu'il montre que pour une boîte quantique dans laquelle on serait capable de maintenir une polarisation de spin importante d'un électron sur son niveau fondamental, l'interaction hyperfine conduit à un champ magnétique effectif suffisant pour écranter l'interaction dipôle-dipôle entre noyaux. Les conséquences de cet effet seront discutées plus en détails au chapitre suivant.

4.3 Mise en évidence de la polarisation nucléaire : des semiconducteurs massifs aux boîtes quantiques

Nous avons déjà évoqué ce point en introduction de ce chapitre : l'observation de boîtes quantiques uniques permettra de mettre en évidence, de manière directe, la polarisation des spins nucléaires ainsi que la relaxation du spin électronique induite par les fluctuations du champ nucléaire.

De manière très générale, la polarisation nucléaire induite par l'orientation optique de l'électron agit en retour comme un champ effectif (le champ Overhauser) sur le spin électronique, de la même façon que le champ magnétique appliqué. Le spin électronique évolue donc dans le champ total $\vec{B} + \vec{B}_n$. Cette rétroaction du champ Overhauser sur les niveaux d'énergie de l'électron est la signature du pompage optique des spins nucléaires.

4.3.1 Expériences révélant le champ Overhauser

Nous allons ici évoquer différentes expériences de magnéto-optique qui ont mis en évidence le couplage entre l'électron de conduction et les spins nucléaires dans les semiconducteurs. Elles ont toutes le point commun de mettre en évidence les modifications de la relaxation du spin électronique sous l'effet du champ Overhauser. Elles peuvent être classées principalement en deux catégories :

Techniques utilisant un champ magnétique "tournant"

- Détection optique de la Résonance de Spin Électronique (RSE) : quand un champ magnétique parallèle à l'excitation optique polarisée circulairement est associé à un petit champ tournant transverse de pulsation ω , il apparaît pour la condition de résonance $g_e \mu_B B = \hbar \omega$ une chute de la polarisation circulaire. Dans les conditions où le champ Overhauser \vec{B}_n existe, la condition de résonance est modifiée et devient : $g_e \mu_B (B + \vec{B}_n) = \hbar \omega$. La chute de la polarisation circulaire est donc décalée en fréquence ; c'est le "shift" Overhauser.

Ces expériences ont été réalisées dans les années 1970 par C. Hermann et V. L. Berkovits dans les semiconducteurs massifs dopés [1].

- Le pendant de la RSE pour les noyaux est bien évidemment la RMN . Le domaine des fréquences de résonance passe alors des très hautes fréquences (plusieurs centaines de MHz) pour la RSE au domaine des radio-fréquences (de l'ordre du Mhz). Quand la condition de résonance associée à une espèce nucléaire est remplie, la diminution de la composante selon l'axe optique de \vec{B}_n entraîne alors une diminution de la polarisation circulaire de la luminescence. On peut ainsi repérer à chaque résonance d'une espèce nucléaire particulière, une baisse de la polarisation électronique. L'existence du champ Overhauser permet ainsi une détection optique de la RMN.

Techniques utilisant uniquement un champ statique

- L'effet Hanle en champ oblique : la configuration oblique du champ magnétique par rapport à l'axe optique permet de ne pas détruire la polarisation de spin électronique et ainsi conserver des effets nucléaires.¹⁰ Dans ces conditions, la polarisation circulaire est donnée par l'expression (c.f. Ref. [1] p.62) :

$$P_c(B) = P_c(0) \left(\frac{\sin^2 \theta}{1 + (\Omega T_s)^2} + \cos^2 \theta \right)$$

où $\Omega = g_e \mu_B |\vec{B} + \vec{B}_n| / \hbar$, θ est l'angle entre la direction du champ magnétique appliqué et l'axe optique et T_s le temps de vie effectif du spin de l'électron. La présence du champ nucléaire va considérablement altérer la forme Lorentzienne des courbe Hanle $P_c = f(B)$. Comme le champ nucléaire possède une direction imposée par le spin moyen des électrons, il s'ajoute ou se retranche au champ magnétique externe suivant son sens, ce qui a pour effet de décaler le maximum de P_c au champ magnétique $\vec{B} = -\vec{B}_n$ qui minimise Ω [14].

- Les expériences décrites précédemment furent réalisées dans les années 1970-1980. On peut citer des expériences plus récentes de type pompe-sonde utilisant l'effet Kerr ou l'effet Faraday en champ magnétique transverse. Elles permettent de mettre en évidence une dérive dans le temps de la période de précession électronique quand le champ Overhauser se construit selon l'axe transverse [15, 16].

4.3.2 Expériences types et résultats quantitatifs

Dans cette section nous allons décrire deux expériences, une réalisée sur le semiconducteur massif AlGaAs et l'autre sur les boîtes quantiques de fluctuation d'interface de GaAs. Le but, ici, est de quantifier, pour les deux systèmes, la polarisation nucléaire résultant du pompage optique.

¹⁰Cette affirmation est vraie si le champ transverse est beaucoup plus intense que le champ local B_L

AlGaAs massif V. L. Berkovits *et al.* ont mis en évidence la polarisation des spins nucléaires sur un échantillon de GaAlAs. La figure 4.3 montre l'évolution de la polarisation circulaire de

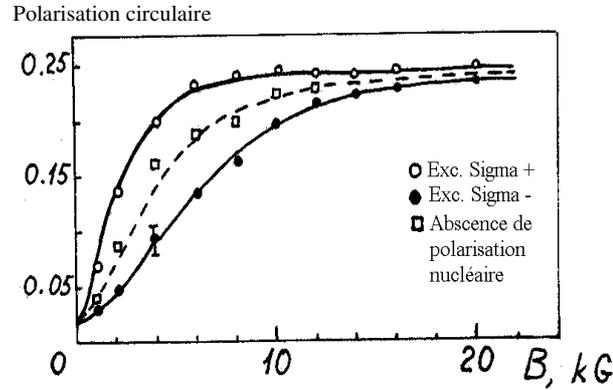


FIG. 4.3: Evolution de la polarisation circulaire en fonction du champ magnétique appliqué, pour une excitation polarisée circulairement σ^+ (o) ou σ^- (•). Les points intermédiaires correspondent à une mesure faite immédiatement après le branchement de l'excitation, donc a priori sans polarisation des spins nucléaires.

la luminescence en fonction du champ magnétique appliqué dans la configuration Faraday (i.e. \vec{B} parallèle à l'axe optique). La courbe en tirets a été réalisée au démarrage de l'excitation optique de l'échantillon, ne laissant pas le temps à la polarisation nucléaire de se construire dans l'échantillon. Elle sert donc de référence. Manifestement, l'expérience montre une dissymétrie de la polarisation circulaire de la luminescence en fonction de l'hélicité de l'excitation (σ^+ ou σ^-) : l'intensité du champ effectif qui limite la relaxation du spin électronique n'est pas équivalente pour les deux excitations. Ceci démontre que le sens du champ Overhauser dépend du signe de $\langle S_z \rangle$, conduisant à un champ effectif total sur l'électron est $\vec{B} \pm \vec{B}_n(\sigma^\pm)$. La polarisation nucléaire est ici révélée de manière *indirecte* par l'effet qu'il induit sur la relaxation du spin électronique.

Néanmoins on peut quand même tirer une valeur du champ nucléaire produit lors de cette expérience et donc de la polarisation des spins nucléaires. Un premier ordre de grandeur peut être facilement déduit de l'écart horizontal entre les courbes de la figure 4.3. Par exemple, la polarisation de 20% est obtenue pour des champs appliqués séparés de $\Delta B = 0.6$ T (entre une excitation σ^+ ou σ^-). En supposant que le champ nucléaire ne dépend que faiblement du champ externe (c.f. Eq. 6.11), on en déduit tout de suite que le champ nucléaire qui s'ajoute ou se retranche au champ appliqué vaut $\Delta B/2 = 0.3$ T.

On peut reproduire les mesures de la figure 4.3 à l'aide d'un modèle qui décrit, la relaxation d'un ensemble de spins électroniques dans un champ magnétique longitudinal, couplé au modèle du pompage optique des noyaux présenté dans ce chapitre. En régime stationnaire, le spin moyen est donné par $\langle S \rangle = \frac{S_0 \tau}{1 + \tau/\tau_s}$ où τ est le temps de vie des électrons photocréés, τ_s le temps de relaxation du spin électronique et enfin S_0 le spin initial de l'électron. Le temps de relaxation en fonction du champ magnétique est donné par $\tau_s(B) = \tau_s(0)(1 + \Omega^2 \tau_c^2)$ qui est la forme générale d'un

processus de relaxation dynamique ¹¹. τ_c est le temps de corrélation des fluctuations du champ magnétique effectif qui produit la relaxation de spin, et Ω vaut $\frac{g_e \mu_B}{\hbar} |\vec{B} + \vec{B}_n|$. La valeur de la polarisation circulaire à champ nul et l'ajustement de la courbe en absence de champ nucléaire permettent de tirer $\tau/\tau_s(0)$ et τ_c . Connaissant ces paramètres, l'équation 6.11 permet de calculer le champ Overhauser B_n pour chaque valeur du champ magnétique appliqué. On retrouve bien une valeur de $\sim 0.3T$ à 1 Tesla.

On peut en déduire que la polarisation nucléaire moyenne $\frac{\langle I \rangle}{I}$ est de l'ordre de 4%, c'est à dire relativement faible par rapport à celle des électrons photocréés. C'est un résultat assez généralement observé : la polarisation nucléaire est souvent bien inférieure à ce qu'elle pourrait être d'après l'équation 4.25. Comme on le verra au chapitre suivant, cet effet est décrit phénoménologiquement par un facteur de fuite.

Boîtes quantiques GaAs A la fin des années 90, D. Gammon *et al.* [17] furent les premiers à mettre en évidence des effets nucléaires dans des boîtes quantiques auto-assemblées de semiconducteur. Il s'agissait alors de boîtes quantiques dites "de fluctuations d'interface", c'est à dire formées par des fluctuations locales de l'épaisseur d'un puits quantique de GaAs avec des barrières d'AlGaAs. La spectroscopie de boîtes quantiques individuelles en champ magnétique permet de montrer directement la construction d'une polarisation nucléaire.

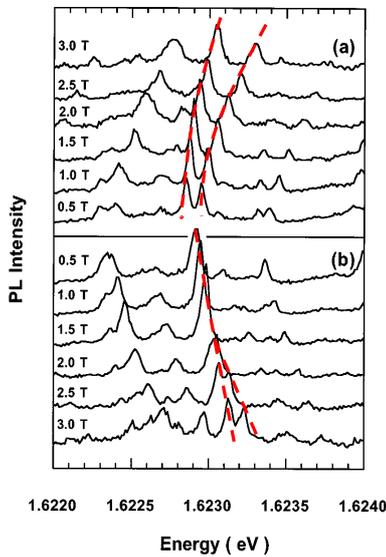


FIG. 4.4: Spectres de luminescence de l'exciton pour différents champs longitudinaux, (a) excitation σ^+ , (b) excitation σ^- .

La figure 4.4 représente une série de spectres de photoluminescence d'un exciton piégé dans une boîte quantique unique, en fonction du champ magnétique longitudinal, et ce pour des po-

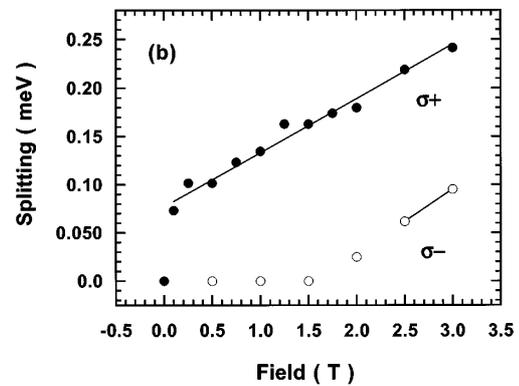


FIG. 4.5: Évolution du splitting excitonique en fonction du champ magnétique appliqué.

¹¹On donnera une dérivation de cette expression au chapitre suivant pour décrire la dynamique de polarisation des spins nucléaires induites par les électrons

larisations d'excitation σ^+ et σ^- . Comme attendu, il y a une augmentation du splitting Zeeman des excitons $\Delta E = |E_{|+1\rangle} - E_{|-1\rangle}|$ avec le champ magnétique. Cependant pour l'excitation σ^+ le splitting est résolu dès 0.5 Tesla alors que pour l'excitation σ^- il devient notable qu'à partir de 2 Tesla. La figure 4.5 montre clairement la dissymétrie du splitting excitonique pour les deux excitations. Cet écart est la contribution du champ Overhauser dont le sens dépend de l'hélicité du pompage optique et qui donc peut être *directement* lu par cette mesure.

Là aussi on peut évaluer la polarisation nucléaire moyenne. La différence de splitting entre les deux configurations d'excitation est liée au shift Overhauser $\delta_n = g_e \mu_B B_n$ par la relation :

$$\Delta E^{\sigma^+} - \Delta E^{\sigma^-} = 2\delta_n$$

Celle-ci est valable dans l'hypothèse où $\vec{B}_n^{(\sigma^+)} = -\vec{B}_n^{(\sigma^-)}$ ce que nous supposons pour l'instant. Nous discuterons plus loin la validité de cette hypothèse. Pour le champ $B = 3T$, le déplacement Overhauser mesuré est $\delta_n = 90 \mu\text{eV}$, ce qui correspond à une polarisation nucléaire moyenne de l'ordre de 60%, en prenant comme valeur maximale $\delta_n^{max} = 2 \sum_{\alpha} A_{\alpha} I_{\alpha} = 135 \mu\text{eV}$ pour GaAs. L'effet observé ici est largement plus important que lors des études menées avec des matériaux massifs dans les années 70-80 ou même plus récemment sur des puits quantiques. Les boîtes quantiques s'avèrent avoir en effet des propriétés très particulières qui renforcent le rôle de l'interaction hyperfine, comme par exemple une polarisation de spin électronique très élevée, la forte localisation des fonctions d'onde électroniques, ou encore une grande aptitude à capturer des excitons et donc de maintenir un taux d'occupation électronique élevé sur un même ensemble de noyaux en nombre limité. Ces différents aspects vont être décrits dans le cas des boîtes InAs/GaAs dans le chapitre qui vient.

Bibliographie

- [1] F. Meier and B. Zakharchenya, editors. *Optical Orientation*, volume 8. North-Holland, 1984.
- [2] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V.I Safarov. Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions. *Physical review B*, 15(12), 1977.
- [3] G. Fishman and G. Lampel. Spin relaxation of photoelectrons in p-type gallium arsenide. *Physical Review B*, 16(2), 1977.
- [4] A. Imamoglu, E. Knill, L. Tian, and P. Zoller. Optical pumping of quantum-dot nuclear spins. *Physical Review Letter*, 91(1), 2003.
- [5] X. Hu and S. Das Sarma. Hilbert-space structure of a solid-state quantum computer : Two-electron states of a double-quantum dot artificial molecule. *Physical Review A*, 61(062301), 2000.
- [6] A. V Kahaetskii, D. Loss, and L. Glazman. Electron spin decoherence in quantum dots due to interaction with nuclei. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 88(18), 2002.
- [7] A. Abragam. *Principles of Nuclear Magnetism*. Oxford science publications, 1961.
- [8] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1973.
- [9] M. Gueron. Density of the conduction electrons at the nuclei in indium antimonide. *Physical review*, 135(A200), 1964.
- [10] I.A Merkulov, A.I. Efros, and M. Rosen. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Physical review B*, 65(205309), 2002.
- [11] D. Gammon, A.I Efros, T.A Kennedy, M. Rosen, D.S Katzer, and D. Park. Electron and nuclear spin interactions in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 86(22), 2001.
- [12] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, and B. Roulet. *Physique Statistique*. Hermann, 1989.
- [13] J. Strand, X. Lou, C. Adelmann, B.D Shultz, A.F Isakovic, C.J Palmtrom, and P.A. Crowell. Electron spin dynamics and hyperfin interactions in Fe/Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs spin injection heterostructures. *Physical Review B*, 72(155308), 2005.
- [14] M. Dyakonov W. Farah, D. Scalbert, and W. Knap. Optically induced nuclear magnetic field in inp. *Physical Review B*, 57, 2006.
- [15] J.M Kikkawa and D.D Awschalom. All-optical magnetic resonance in semiconductors. *Science*, 287(5452) :473–476, 2000.

- [16] A. Brunetti, M. Vladimirova, D. Scalbert, H. Folliot, and A. Lecore. Effect of holes on the dynamic polarization of nuclei in semiconductors. *Physical Review B*, 73(121202), 2003.
- [17] S.W Brown, T.A Kennedy, D. Gammon, and E.S Snow. Spectrally resolved overhauser shifts in single GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum dots. *Physical Review B*, 54(24), 1996.

Chapitre 5

Polarisation dynamique des spins nucléaires dans une boîte quantique où l'on contrôle l'état de charge

Sommaire

5.1	Mise en évidence du déplacement Overhauser	100
5.1.1	Déplacement Overhauser relevé sur les trions	103
5.1.2	Effets sur l'exciton neutre et le biexciton	105
5.1.3	Influence de la puissance d'excitation	108
5.1.4	Valeur de la polarisation nucléaire construite	108
5.2	Mise en équation de la polarisation dynamique des noyaux	109
5.2.1	Description du Hamiltonien dépendant du temps	109
5.2.2	Méthode de calcul	112
5.2.3	Détermination du temps de construction de la polarisation nucléaire	114
5.2.4	Discussion de la physique du mécanisme de polarisation des noyaux	116
5.3	Dépendance du déplacement Overhauser avec la tension de grille	121
5.4	Non-linéarités de la polarisation dynamique des spins nucléaires	125
5.4.1	Évolution du décalage Overhauser avec la polarisation électronique	125
5.4.2	Influence du sens du champ magnétique appliqué	127
5.4.3	Bistabilité de la polarisation nucléaire dans le régime des forts champs magnétiques	129
5.5	Bilan	133

Nous allons maintenant présenter nos résultats obtenus sur les échantillons à contrôle de la charge, essentiellement l'échantillon n-i-Schottky. L'excitation optique sera dans ce chapitre exclusivement continue en particulier en ce qui concerne la polarisation de la lumière.

5.1 Mise en évidence du déplacement Overhauser

Nous avons effectué une série d'expériences de micro-photoluminescence sur boîtes uniques en présence d'un faible champ magnétique longitudinal. Le rôle de ce dernier est d'écranter l'interaction dipolaire entre noyaux pour percevoir la construction d'une polarisation nucléaire. Nous avons utilisé pour cela un aimant permanent, inséré dans une mortaise creusée directement dans le doigt froid du cryostat. Il se trouve donc à une distance de quelques millimètres de l'échantillon et délivre un champ magnétique de ~ 0.2 Tesla au niveau de la boîte quantique étudiée.

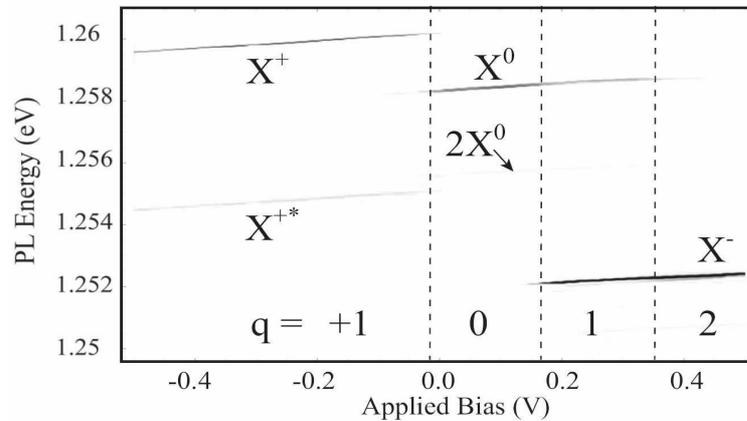


FIG. 5.1: Intensité de la photo-luminescence en fonction de la tension appliquée et de l'énergie de détection. Excitation à 1.31 eV.

La figure 5.1 construite à partir d'une succession de spectres de photoluminescence acquis par une caméra CCD refroidie montre les différents états de charge de la boîte quantique étudiée. Chacun de ces états peut manifestement être étudié séparément sous excitation intra-boîte (c.f. Chap. 3) et en ajustant la tension pour qu'un seul type d'exciton (X^0 , X^- ou X^+) luminesce. Les spectres de photoluminescence qui vont être analysés dans cette section ont été obtenus pour une excitation à 1.34 eV. Les tensions retenues pour lesquelles X^+ , le couple X^0 et $2X^0$ et X^- luminescent de manière isolée, sont respectivement -200 mV, 0 mV et 450 mV.

Champ magnétique nul : l'identification des raies reportée sur la figure 5.1 est confirmée par l'observation des structures fines en analysant la photoluminescence en polarisation linéaire. La figure 5.2 montre clairement un splitting d'échange anisotrope pour le biexciton et l'exciton de $\delta_1 = 46\mu\text{eV}$. Le renversement des composantes polarisées X et Y atteste bien de la relation exciton-biexciton entre ces deux doublets séparés de ~ 2.5 meV. Les excitons chargés X^+ et X^- ne présentent pas de telle structure fine, comme attendu. On remarque une nette différence d'intensité des composantes X et Y pour l'exciton, le biexciton et le trion X^- . L'origine physique de cet effet n'est pas clairement identifié mais révèle, au même titre que la structure fine ani-

sotrope, la symétrie réduite des boîtes quantiques. Il est probable qu'une différence des forces d'oscillateur entre les directions de polarisation $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$, résultant d'un mélange d'états de trou lourd et léger dans la bande de valence [1, 2], soit responsable de cet effet quand bien même une expérience de photoluminescence ne constitue une mesure de la force d'oscillateur que sous certaines conditions [3].

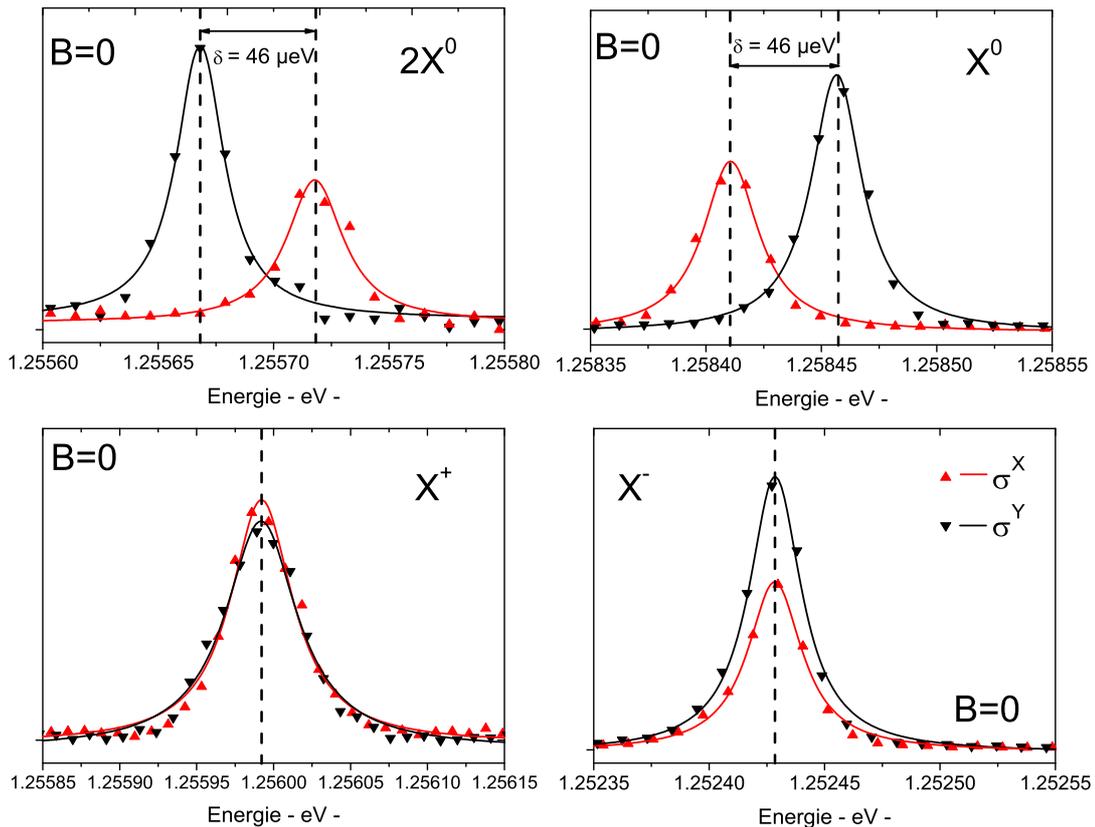


FIG. 5.2: Zoom des spectres de photoluminescence montrant la structure fine des différents états de charge de la même boîte quantique. Puissance d'excitation $\sim 0.25 \text{ kW cm}^{-2}$. Excitation à 1.34 eV polarisée linéairement. Analyse linéaire suivant deux directions orthogonales X et Y parallèles au bord de clivage de type $\langle 110 \rangle$. Pas de champ magnétique appliqué.

Sous champ magnétique $B=0.2$ Tesla : La figure 5.3 montre la levée de dégénérescence induite par le champ magnétique sur les composantes σ^+ et σ^- . En excitant linéairement σ^X , on s'affranchit des effets nucléaires, de sorte que les splittings Zeeman mesurés en résolvant les raies polarisées σ^+ et σ^- sont uniquement induits par le champ magnétique extérieur. Il vaut $\delta_z = |g_X| \mu_B B$ où g_X est le facteur de Landé de l'exciton. La valeur de ce dernier est supposée indépendante de l'état de charge de la boîte [4, 5]. Bien que pour cette boîte, il ne soit pas mesuré en appliquant un champ magnétique plus important, le splitting Zeeman des trions

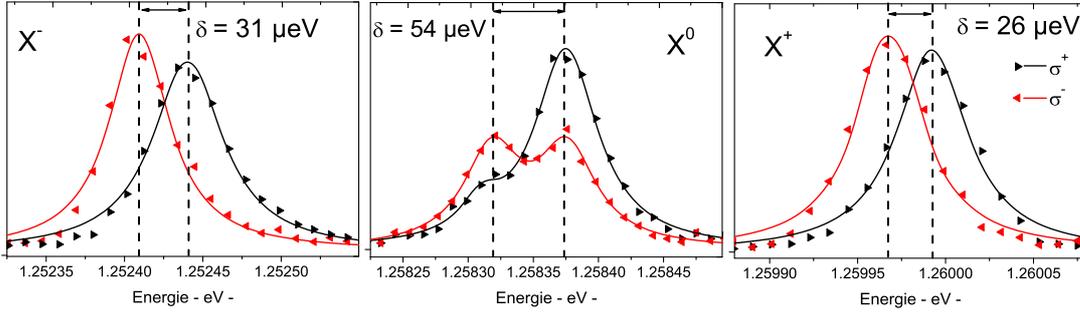


FIG. 5.3: Zoom des spectres de photoluminescence résolus en polarisation circulaire pour une excitation polarisée linéairement σ^X à 1.34 eV. Champ magnétique appliqué de 0.2 Tesla.

de $\sim 28\mu\text{eV}$ conduit à une valeur de g_X proche de 3[6]¹. Quant à l'exciton neutre, le champ magnétique appliqué accroît le splitting des deux composantes de spin qui vaut maintenant $\sqrt{\delta_1^2 + \delta_z^2} = 54\mu\text{eV}$. Pour les trions X^\pm on peut noter que les raies sont parfaitement polarisées circulairement tandis que pour l'exciton les raies gardent une polarisation elliptique en raison du terme d'échange anisotrope initialement présent.

Quelques mots sur la mesure des splittings : Pour mesurer avec grande précision les splittings nous utilisons une déconvolution par une fonction Lorentzienne des raies de luminescence : cet ajustement donne un meilleur χ^2 que celui donné par un ajustement Gaussien. L'erreur statistique sur la position du maximum est de l'ordre de $\sim 1\mu\text{eV}$. Cependant, on remarque par exemple sur la figure 5.3, que les splittings Zeeman de X^+ et de X^- montrent une différence de $5\mu\text{eV}$. Même si l'on ne peut exclure une variation du facteur de Landé en fonction de la charge (ou simplement du champ électrique) cette valeur correspond en fait à la fourchette de reproductibilité de nos mesures. Plusieurs raisons expérimentales peuvent expliquer ces fluctuations :

- Le champ électrique local sur la boîte peut être modifié par les porteurs photocréés. Les fluctuations du champ électrique pourraient alors expliquer de petites variations sur la position du maximum de la raie de luminescence en particulier si entre deux spectres consécutifs, les conditions d'excitation ont un peu varié.
- Le doigt froid du cryostat peut lentement se déplacer autour d'une position centrale. En effet, il est couplé aux vibrations extérieures par la canne du transfert continu d'hélium, et subit en permanence des contraintes thermiques. Cet effet est généralement observé directement dans l'espace réel sur les variations du photocourant qui dépend fortement de la focalisation du laser sur les ouvertures micrométriques de l'échantillon (c.f. Chap. 2). Un tel déplacement dans le plan focal du microscope a un effet direct dans le plan de Fourier du monochromateur. Sur la ligne de détection optique, le grandissement transverse est d'environ 10, par conséquent un petit déplacement transverse du cryostat de $1\mu\text{m}$ peut

¹M. Bayer a montré que la valeur de g_X varie finalement très peu d'une boîte quantique InAs/GaAs à l'autre.

faire bouger la position de la raie de luminescence de $\sim 10\mu\text{m}$ sur la CCD, soit un déplacement d'un demi-pixel (1 pixel = $14\mu\text{eV}$). A cet égard, l'utilisation d'ouvertures de $1\mu\text{m}$ est donc un précieux garde-fou, même s'il nous contraint à réaligner l'échantillon de temps à autre.

5.1.1 Déplacement Overhauser relevé sur les trions

Trion positif X^+ : La figure 5.4 montre le changement de la valeur du splitting des raies polarisées circulairement du trion positif X^+ pour les trois configurations d'excitation σ^- , σ^X et σ^+ .

- ◇ Sous excitation σ^- , on note une diminution du splitting de $14\mu\text{eV}$ par rapport au seul effet Zeeman observé au paragraphe précédent.
- ◇ Sous excitation σ^+ , l'effet inverse se produit avec une augmentation de $11\mu\text{eV}$.

La différence ainsi relevée est tout à fait significative puisqu'elle s'élève à $25\mu\text{eV}$. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, cet écart au splitting Zeeman mesuré sous excitation linéaire est une mesure directe du déplacement Overhauser causé par la polarisation des noyaux. D'ailleurs la polarisation circulaire de X^+ de l'ordre de $+50\%$ atteste bien qu'une forte orientation optique du spin électronique est réalisée lors de l'excitation intra-boîte. Ce résultat est parfaitement conforme aux conclusions du chapitre 3 tirées des mesures sur ensemble de boîtes. La construction de la polarisation nucléaire, rendue possible grâce au petit champ magnétique de 0.2 Tesla, résulte donc du transfert de spin de l'électron polarisé vers les noyaux avant que le trion X^+ ne se recombine radiativement.

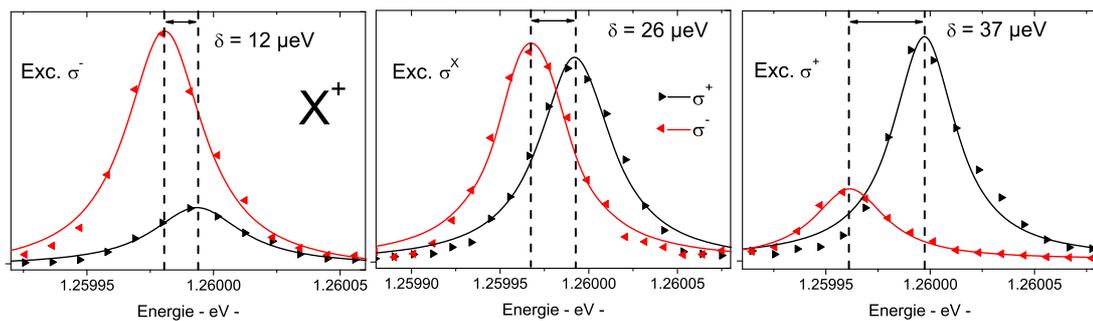


FIG. 5.4: Spectres de photoluminescence de X^+ montrant l'évolution du splitting Zeeman pour les polarisations circulaires σ^\pm de l'excitation. Champ magnétique appliqué de 0.2 Tesla.

Trion négatif X^- : Maintenant, nous allons nous intéresser au trion négatif. La formation de l'état singulet électronique dans l'état initial de X^- (le spin total électronique est nul) nous invite à penser que la polarisation des spins nucléaires de la boîte quantique n'est plus possible dans cette configuration.

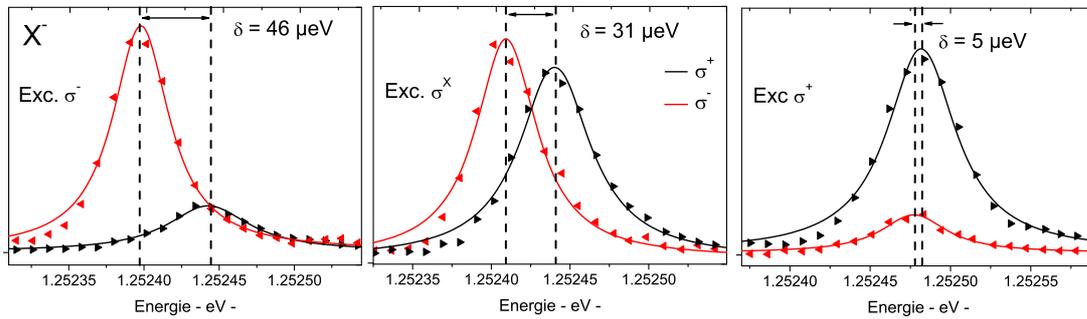


FIG. 5.5: Spectres de photoluminescence de X^- montrant l'évolution du splitting Zeeman en fonction de la polarisation de l'excitation. Excitation à 1.34 eV. Champ magnétique appliqué de 0.2 Tesla.

Cependant la figure 5.5 montre manifestement une modification du splitting de X^- avec la polarisation de l'excitation, avec toutefois une différence notable par rapport à X^+ :

- ◇ Sous excitation σ^- le splitting augmente de $15\mu\text{eV}$ alors que précédemment pour X^+ il diminuait.
- ◇ De la même manière, sous excitation σ^+ on constate une diminution du splitting de $26\mu\text{eV}$, alors que la même configuration d'excitation donnait lieu à une augmentation pour X^+ .

Cette observation, en apparence assez troublante, s'interprète sans difficulté en réalisant que l'électron laissé seul dans la boîte après l'émission d'un photon, est lui-même susceptible de polariser les noyaux. La polarisation circulaire de X^- est ici extrêmement élevée de l'ordre de +80%. Elle traduit en premier lieu celle du trou créé optiquement dans le complexe X^- , mais détermine aussi en principe celle de l'électron dans l'état final de la recombinaison optique. Le schéma 5.6 permet de comprendre aisément l'inversion du déplacement Overhauser avec

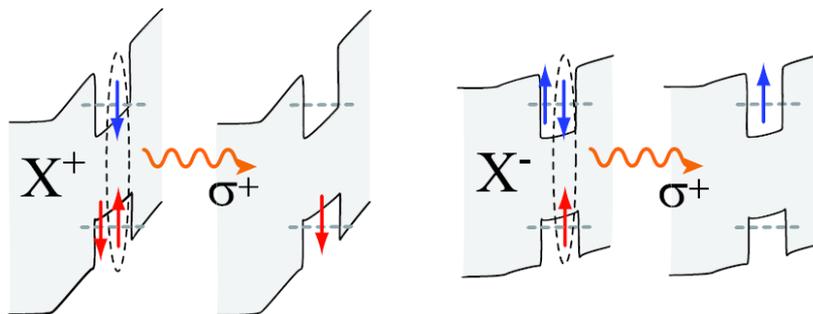


FIG. 5.6: Configuration électronique des états initiaux et finaux de X^+ et X^- correspondant à l'émission d'un photon σ^+

l'état de charge de la boîte pour la même polarisation d'excitation : la photoluminescence ayant la même hélicité dans les deux cas, il s'ensuit que le spin électronique dans l'état initial de X^+ est anti-parallèle à celui de X^- dans son état final. Le champ Overhauser induit par la polarisation électronique reflète donc simplement cette inversion. En corollaire, cela démontre que c'est bien principalement l'électron confiné dans la boîte quantique qui polarise les noyaux. Tout se passe donc comme si la tension contrôlait le sens du champ magnétique nucléaire. Au passage, nous confirmons de "manière originale" l'identification des raies de luminescence des excitons chargés.

A ce titre, nos résultats révèlent une différence notable avec ceux de A.S. Bracker *et al.* [7]. Ces auteurs ont mis en évidence le pompage optique des spins nucléaires sur une boîte unique de fluctuation d'interface GaAs où l'état de charge est aussi contrôlé par une tension de grille. La figure 5.7 montre l'évolution en fonction de la tension, de la polarisation circulaire et du shift Overhauser des trions X^+ et X^- . Dans ces expériences le champ appliqué était de 5 Tesla. La polarisation négative de X^- traduit un mécanisme de spin-flip du trou avant thermalisation du trion, qui dépend fortement des conditions d'excitation (énergie, puissance) mais aussi de la tension. Pour des conditions d'excitation et de tension donnant une polarisation circulaire de même signe pour les deux trions (positive ici), le signe du shift Overhauser correspondant à X^- ne montre pas de changement de signe par rapport à celui de X^+ . Ceci indique clairement que la polarisation nucléaire n'est pas uniquement induite par l'électron confiné dans la boîte quantique, mais en fait par les électrons délocalisés dans le puits quantique, au voisinage de la boîte (figure 5.8).

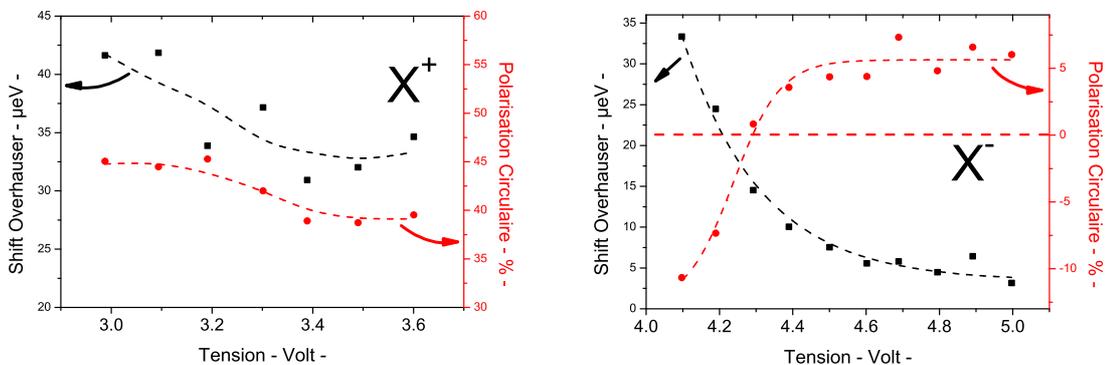


FIG. 5.7: Données expérimentales de A.S Bracker [7]. Évolution en fonction de la tension de grille, de la polarisation circulaire et du shift Overhauser pour X^+ et X^- . Excitation σ^+ .

5.1.2 Effets sur l'exciton neutre et le biexciton

De manière générale, on ne constate pas d'effet Overhauser notable induit par l'exciton neutre X^0 ou le biexciton $2X^0$. Cette absence d'effet contraste avec les résultats précédents issus de [8]. Pour comprendre cette différence, on peut invoquer le fait que nous sommes dans un régime de champ magnétique faible (0.2 Tesla) alors que le champ magnétique des expériences décrites

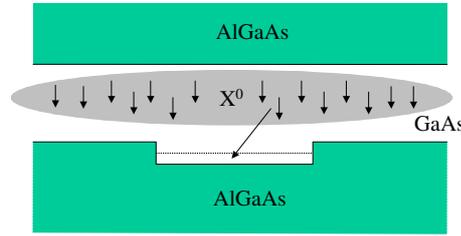


FIG. 5.8: Schéma d'une boîte quantique de fluctuation d'interface d'un puits quantique. Les excitons piégés sondent la polarisation nucléaire sur un volume qui n'est pas isolé du puits quantique.

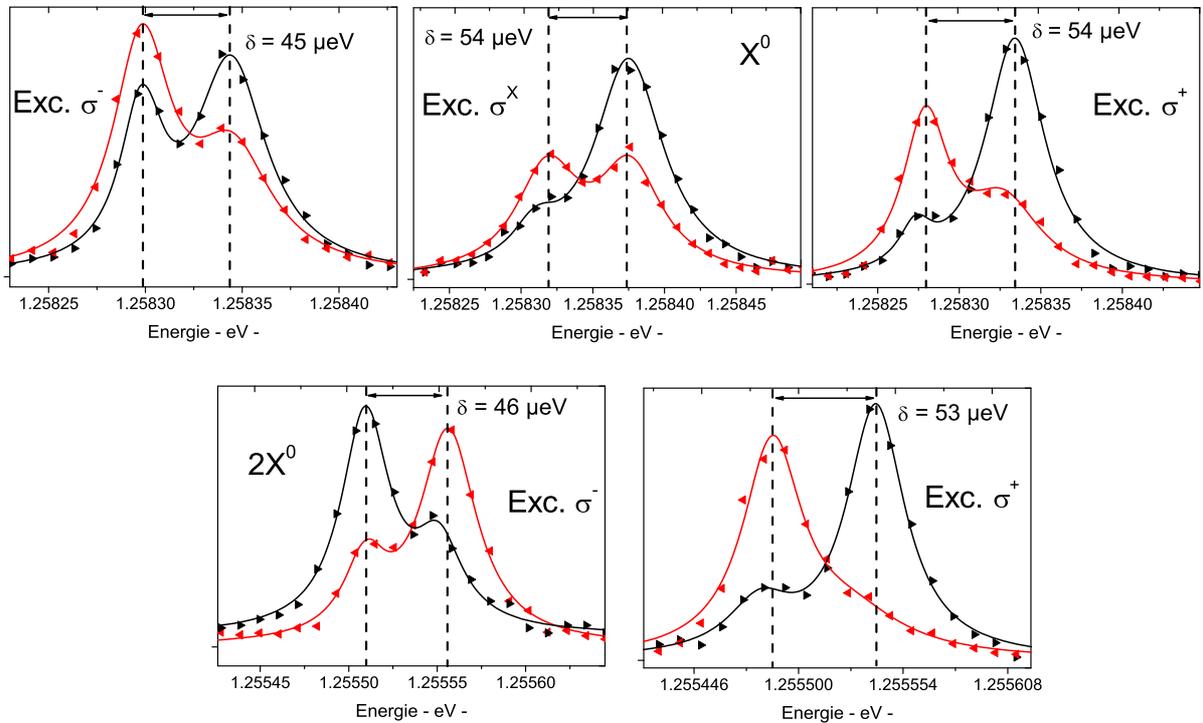


FIG. 5.9: Evolution du splitting Zeeman de l'exciton et du bi-exciton en fonction de la polarisation de l'excitation. Excitation à 1.34 eV. Champ magnétique appliqué de 0.2 Tesla.

dans [8] est de l'ordre du Tesla. Ainsi, dans notre cas, la polarisation circulaire de la luminescence de l'exciton neutre n'est que de quelques pourcents (voir Fig. 5.9) ; ceci en raison du terme d'échange anisotrope $\delta_1 \sim 46\mu\text{eV}$ qui demeure plus grand que le splitting Zeeman ($\sim 28\mu\text{eV}$). Cependant, D. Gammon *et al.* [9] ont démontré, en étudiant plus finement une boîte quantique de fluctuation d'interface, l'effet Overhauser pour un champ appliqué de seulement $\sim 80\text{mT}$ dans l'état X^0 . Ils ne mentionnent cependant pas la valeur de la polarisation circulaire obtenue pour un tel champ, d'autant plus qu'ils attribuent le pompage optique des noyaux aux excitons noirs, non détectables en luminescence, et qui se trouveraient fortement polarisés. Or, il est certain que

les effets nucléaires induit par l'électron d'un exciton neutre sont grandement dépendants de la structure fine excitonique : le spin-flip de l'électron avec un noyau passe en effet par le couplage des excitons brillants aux noirs par l'interaction hyperfine. Ce mécanisme est donc inhibé par la différence d'énergie δ_0 entre états brillants et noirs, de l'ordre de $100 \mu\text{eV}$ pour les boîtes GaAs. Cela fait donc deux raisons qui plaident contre la possibilité d'orienter efficacement les spins des noyaux à partir d'excitons neutres.

Néanmoins, ceux-ci doivent rester sensible à la polarisation nucléaire du système. La figure 5.9 montre en effet une diminution de $\sim 10 \mu\text{eV}$ des splittings de X^0 et $2X^0$ pour l'excitation σ^- (par rapport à l'excitation σ^+). Ceci peut se comprendre de la manière suivante : en excitant à 1.34 eV il y a en fait coexistence dans un petit domaine de tension centré sur 0 Volt de X^+ , X^0 et de $2X^0$ comme le montre la figure 5.10. On constate que la polarisation circulaire du trion positif X^+ est de $\sim 27\%$. L'exciton neutre subit alors le champ nucléaire qui est produit par X^+ et qui effective-

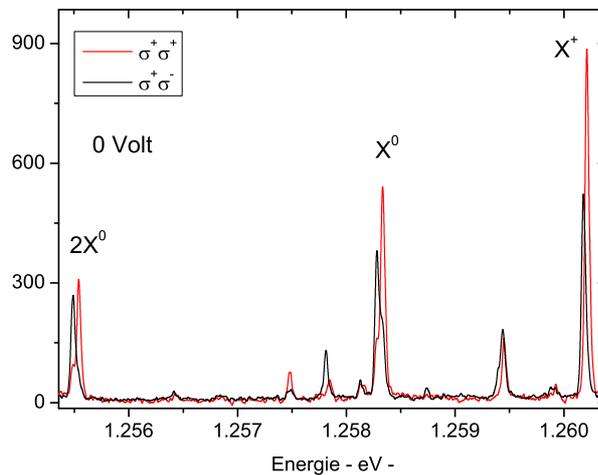


FIG. 5.10: Spectres de luminescence résolus en polarisation circulaire montrant la coexistence de $2X^0$, X^0 et X^+ à 0 Volt pour une excitation à 1.34 eV . Champ appliqué de 0.2 Tesla .

ment s'oppose au champ appliqué sous excitation σ^- (c.f. Fig. 5.4). Il n'est donc pas surprenant d'observer cette même signature pour l'exciton neutre.

On peut alors se demander pourquoi le splitting de l'exciton neutre ne montre pas de déviation pour l'excitation σ^+ , comparée à l'excitation linéaire. Dans les deux cas on mesure un splitting d'environ $54 \mu\text{eV}$. Pour expliquer cela, revenons sur les effets observés pour les trions et résumés dans le tableau 5.1.2. On constate une dissymétrie du déplacement Overhauser par rapport aux polarisations d'excitation $\sigma^+ \sigma^-$ qui montre que l'hélicité de l'excitation influence nettement l'intensité du champ Overhauser optiquement créé². Le signe de δ_n fait ici référence au signe du splitting Zeeman δ_z , donc du champ magnétique. Avec ces valeurs, on peut estimer le splitting attendu pour l'exciton neutre par la formule $\sqrt{\delta_1^2 + (\delta_z + \delta_n)^2}$. Il n'apparaît en fait qu'une

²Peu de temps après nos mesures, C. W. Lai *et al.*[10] ont confirmé cette dissymétrie sur boîte unique d'InAs pour un champ magnétique encore plus faible de 20 mT .

état de charge	X^+	X^-
excitation σ^-	$\delta_n = -14\mu\text{eV}$	$\delta_n = +15\mu\text{eV}$
excitation σ^+	$\delta_n = +11\mu\text{eV}$	$\delta_n = -26\mu\text{eV}$

TAB. 5.1: Valeurs des déplacements Overhauser mesurés pour les deux trions d'une même boîte quantique.

hausse de $4 \mu\text{eV}$ du splitting de l'exciton neutre en prenant la valeur du trion positif pour δ_n , valeur sans doute surévaluée à la tension où X^0 est mesuré. Donc finalement, l'anomalie reste assez marginale, dans l'incertitude de la mesure. On notera toutefois que l'asymétrie reportée dans le tableau 5.1.2 pour les trions est bien réelle, et repose sur un aspect fondamental du mécanisme microscopique qui construit la polarisation nucléaire, qui apparaîtra naturellement dans la description théorique présentée plus loin.

5.1.3 Influence de la puissance d'excitation

Les résultats montrés plus haut sont issus de l'échantillon n-i-Schottky où le contrôle de la charge des boîtes quantiques est effectif. Chronologiquement, nous avons mis en évidence l'effet Overhauser d'abord en étudiant l'échantillon p-i-Schottky. Sur cet échantillon nous n'avons pas obtenu le contrôle déterministe de la charge des boîtes par la tension de manière probante (c.f. Chap. 3). Cependant, nous avons pu extraire une information qualitative importante concernant l'influence de la puissance d'excitation sur la polarisation nucléaire. La figure 5.11 présente la mesure du splitting d'un trion positif³ X^+ dans un champ magnétique de 0.2 Tesla en fonction de la puissance d'excitation.

De manière très claire, le shift Overhauser croît avec la puissance d'excitation. Ce résultat est en accord avec une expérience similaire effectuée par D. Gammon [8]. De plus l'asymétrie de la polarisation nucléaire mentionnée au-dessus apparaît maintenant de manière très significative. Pour l'échantillon n-i-Schottky, l'effet de la puissance est présent mais moins prononcé. On atteint probablement plus rapidement un niveau de saturation du champ nucléaire photo-induit. La figure 5.12 montre que la polarisation circulaire de X^- est constante, démontrant que l'augmentation du splitting Zeeman est bien imputable à l'augmentation de la puissance en tant que telle.

5.1.4 Valeur de la polarisation nucléaire construite

Pour terminer cette première description de mesures montrant le pompage optique des spins nucléaires dans les boîtes quantiques InAs, nous allons estimer la valeur de la polarisation nucléaire. Le déplacement Overhauser maximum que nous avons pu mesurer est $\sim 25\mu\text{eV}$ correspondant à un champ nucléaire sur l'électron de ~ 0.54 Tesla, en prenant $|g_e| = 0.8$. Nous avons

³Raie identifiée comme telle par sa position en énergie relativement à un couple exciton-biexciton, son absence de structure fine et sa forte polarisation circulaire

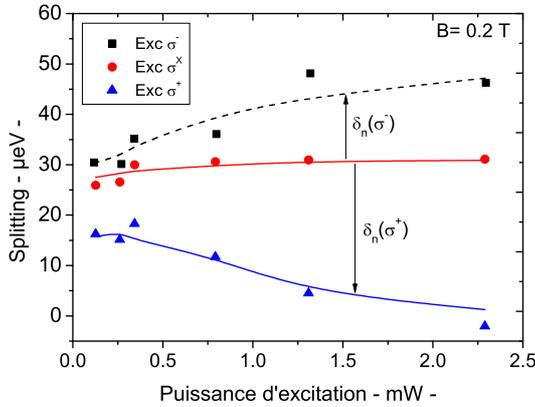


FIG. 5.11: Évolution du splitting Zeeman de X^+ en fonction de la puissance d'excitation. Echantillon p-i-Schottky. Champ magnétique appliqué de 0.2 Tesla

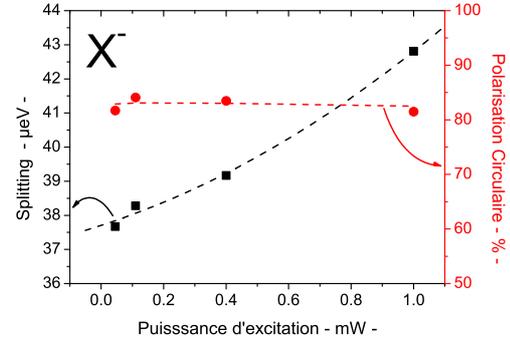


FIG. 5.12: Échantillon n-i-Schottky. Champ magnétique appliqué de 240 mT. Excitation circulaire.

vu au chapitre précédent que la polarisation nucléaire moyenne est donnée par :

$$\frac{\langle I \rangle}{I} = \frac{\delta_n}{2 \sum_{\alpha} x_{\alpha} A_{\alpha} I_{\alpha}}$$

Pour une boîte d'InAs qui en raison de l'interdiffusion des atomes lors de la croissance a une composition réaliste donnée par $x_{In}=0.3$, $x_{Ga}=0.2$ et $x_{As}=0.5$, nous trouvons que $2 \sum_{\alpha} x_{\alpha} A_{\alpha} I_{\alpha} \sim 250 \mu eV$. La polarisation nucléaire que l'on a mesurée s'élève donc à $\sim 10\%$. Cette valeur est supérieure à celle obtenue généralement dans les matériaux massifs mais contraste tout de même nettement avec les 60% mesurés dans les boîtes de fluctuation d'interface en GaAs. Elle laisse donc présager l'existence de mécanismes de dépolarisation efficaces dans notre cas, d'autant plus que la polarisation des électrons créée optiquement avoisine les 100%.

5.2 Mise en équation de la polarisation dynamique des noyaux

Le but de cette partie est d'établir une équation dynamique pour la composante \hat{I}_z du spin des noyaux d'une boîte quantique sous l'effet du pompage optique orienté des trions. Plus précisément, dans le formalisme de la matrice densité, nous allons caractériser l'évolution de la polarisation nucléaire "macroscopique" de la boîte, c'est-à-dire décrire l'évolution de la moyenne d'ensemble $\langle I_z \rangle_N$. Ceci permettra de comprendre très finement les paramètres qui contrôlent la construction de la polarisation nucléaire.

5.2.1 Description du Hamiltonien dépendant du temps

Nous allons considérer comme système un noyau j de la boîte et l'électron qu'elle contient. On peut dénombrer les interactions sur ce système : le champ magnétique interagissant sur le

spin de l'électron et du noyau (effet Zeeman), le champ dipolaire local sur le noyau et le terme de couplage hyperfin. Mais pour décrire le système de manière réaliste, on ne peut oublier que l'électron est couplé au champ électromagnétique (émission/absorption de photons) et au continuum 3D de GaAs (échappement tunnel vers l'électrode dopée). Ce couplage à des continus va tenir lieu de couplage au thermostat que l'on avait considéré au chapitre précédent pour un matériau massif. La situation physique à décrire est donc loin d'être simple. En particulier, un des points délicats sera de prendre en compte le fait que l'électron peut quitter la boîte et y "revenir" (au cycle radiatif suivant). C'est évidemment ce "va-et-vient" qui permet de polariser les spins nucléaires en assurant un renouvellement de la polarisation de spin électronique.

Simplement, pour illustrer cet argument, on peut imaginer un électron de spin initialement orienté \uparrow mais restant indéfiniment dans la boîte. Un événement "flip-flop" peut avoir lieu entre le noyau j et l'électron. L'état de spin du système couplé électron-noyau devient par exemple $|m_j + 1, \downarrow\rangle$. Comme on a supposé que l'électron a un temps de vie extrêmement long dans la boîte, rien n'interdit un nouveau mécanisme "flip-flop" avec un autre noyau k . Cette nouvelle configuration est décrite par un état de spin : $|m_k - 1, \uparrow\rangle$ et ainsi de suite. En bref, un seul électron ne peut céder qu'une fois son spin au système de noyaux.

Par contre, la situation optimale serait que l'électron quitte la boîte juste après avoir transféré son spin à un noyau puis, qu'au cycle radiatif suivant, un autre électron de spin orienté répète cet échange avec un autre noyau. Dans ce cas, chaque événement "flip-flop" contribue de manière constructive à établir une polarisation nucléaire finie dans la boîte. Pour obtenir un effet cumulatif, il suffit cependant que l'électron ait une probabilité de flip-flop non nulle et qu'il soit renouvelé au cours du temps avec un spin bien orienté. C'est le principe de la polarisation dynamique des noyaux.

Pour décrire quantitativement cet effet commençons par écrire l'Hamiltonien de spin du système en le décomposant en une partie statique et une partie dépendant explicitement du temps :

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{H}_1 h_1(t) \quad (5.1)$$

L'Hamiltonien statique \hat{H}_0 du système électron-noyau dans un champ magnétique B parallèle à l'axe optique z s'écrit :

$$\hat{H}_0 = \mu_I(B + B_e^j)\hat{I}_z^j + g_e\mu_B(B + B_n)\hat{S}_z \quad (5.2)$$

ou sous une forme plus compacte :

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_{Ij}\hat{I}_z^j + \hbar\omega_S\hat{S}_z \quad (5.3)$$

Dans cette expression on a pris en compte le champ Knight moyen de l'électron sur le noyau $B_e^j = -2A^j\langle S_z \rangle / N\mu_{Ij}$ ainsi que le champ Overhauser sur l'électron produit par l'ensemble des noyaux de la boîte quantique, c'est à dire $B_n = 2\sum_{\alpha} x_{\alpha}A_{\alpha}\langle I_z^{\alpha} \rangle / g_e\mu_B$. Les composantes transverses de ces deux champs ont des valeurs moyennes nulles, mais c'est leurs fluctuations temporelles qui vont donner lieu aux transitions entre états propres de \hat{H}_0 et donc modifier les populations associées. L'Hamiltonien de perturbation $\hat{H}_1 h_1(t)$ se compose donc de deux termes :

- ◇ le terme "flip-flop" associé aux fluctuations transverses de l'interaction hyperfine de l'électron avec le noyau j :

$$\hat{H}_{f.f.}(t) = \frac{A^j}{N} \left[\hat{I}_+^j \hat{S}_- + \hat{I}_-^j \hat{S}_+ \right] h_1(t)$$

Comme on l'a mentionné au chapitre précédent c'est ce terme qui va gouverner la polarisation dynamique des noyaux.

- ◇ les fluctuations du champ Knight :

$$\hat{H}_{Knight}(t) = \frac{2A^j}{N} \left(\hat{S}_z - \langle S_z \rangle \right) \hat{I}_z^j h_1(t)$$

Cet opérateur seul n'a en fait guère d'effet étant donné qu'il commute avec l'Hamiltonien \hat{H}_0 que nous avons posé. En prenant en compte l'interaction dipolaire entre noyaux qui se manifeste par un champ local B_L pour le noyau j , il faut rajouter à \hat{H}_0 un terme perturbatif⁴ indépendant du temps⁵ et de la forme $\hat{H}_2 = \mu_{Ij} B_L \hat{I}_x^j$. Dans ces conditions, l'opérateur $\left(\hat{S}_z - \langle S_z \rangle \right) \hat{I}_z^j$ n'a plus une représentation diagonale dans la base propre de l'Hamiltonien total $\hat{H}_0 + \hat{H}_2$; il induit alors des transitions entre sous niveaux Zeeman et participe donc à un phénomène de dépolarisation [9].

La dépendance temporelle des fluctuations de l'interaction hyperfine est représentée ici par la fonction aléatoire $h_1(t)$. De manière simplifiée on peut la concevoir comme décrivant la présence de l'électron dans la boîte, égale à 1 quand l'électron est présent et 0 sinon comme illustré sur la figure 5.13. Cette fonction aléatoire est principalement caractérisée par sa fonction d'auto-corrélation :

$$g(\tau) \equiv \overline{h_1(t)h_1(t-\tau)} \quad (5.4)$$

que l'on peut prendre par exemple sous la forme $g(\tau) \simeq f_e e^{-|\tau|/\tau_c}$ où :

- (i) τ_c est le temps de corrélation de $h_1(t)$, intimement lié au temps de vie de l'électron sur l'état de conduction $|S\rangle$ de la boîte.
- (ii) f_e est la fraction du temps pendant lequel l'électron est dans la boîte.

Pour prendre en compte le fait que l'électron que l'on considère peut interagir avec le noyau j en étant sur différents niveaux de la boîte quantique (lors de la relaxation vers le niveau fondamental), elle même dans différents états de charge, il faudrait généraliser l'expression de la fonction $g(\tau)$. Par exemple, en considérant la situation où dans la boîte se forme aléatoirement deux états différents X^0 et X^+ la fonction de corrélation pourrait s'écrire : $g(\tau) = f_{X^0} e^{-|\tau|/\tau_c^{X^0}} + f_{X^+} e^{-|\tau|/\tau_c^{X^+}}$.

Pour simplifier, nous avons choisi de prendre $g(\tau)$ comme une simple fonction mono-exponentielle, mais rien n'interdirait de considérer une dépendance plus complexe, bi-exponentielle. Par exemple, on pourrait imaginer faire intervenir un temps de corrélation associé

⁴dans le sens où $B_L \ll B$, B_e^j

⁵car variant sur le temps caractéristique T_2 beaucoup plus long que le temps de corrélation de $h_1(t)$

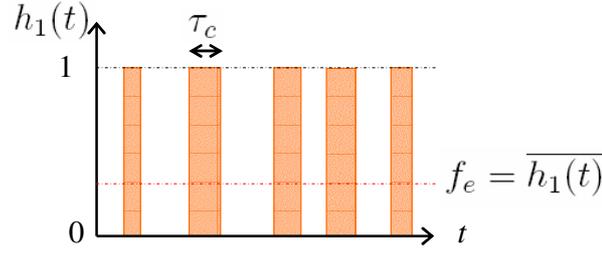


FIG. 5.13: $h_1(t)$: fonction aléatoire décrivant l'occupation de l'électron dans la boîte

à la relaxation de l'électron sur le niveau fondamental et un deuxième temps de corrélation relatif au déclin radiatif. En pratique, il s'avère que si ces deux temps sont très différents, un seul de ces temps intervient (généralement le plus court) dans la dynamique de polarisation. Finalement, le couplage de l'électron avec les continums optique et électronique des états 3D du GaAs massif, qui semblait difficile à prendre en compte, est décrit phénoménologiquement par la fonction d'auto-corrélation $g(\tau)$.

5.2.2 Méthode de calcul

Nous allons présenter ici la méthode très générale de résolution de l'équation maîtresse associée à l'Hamiltonien 5.1 en suivant l'approche développée par A. Abragam [11] pour décrire la polarisation dynamique des noyaux dans les liquides. Cela nous permettra d'explicitier l'évolution de la valeur moyenne de l'observable \hat{I}_z qui est la grandeur directement reliée au déplacement Overhauser mesuré.

L'évolution de la matrice densité $\sigma(t)$ qui décrit l'état du système précédent est régie par l'équation de Liouville :

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}(t), \sigma(t)] \quad (5.5)$$

La première étape consiste à isoler l'effet de la perturbation dépendante du temps en utilisant la représentation d'interaction qui revient à se placer dans le "référentiel tournant" associé à \hat{H}_0 . A tout opérateur \hat{Q} dans la représentation initiale de Schrödinger, on fait correspondre en représentation d'interaction, l'opérateur Q^* défini par

$$Q^*(t) = e^{\frac{i}{\hbar} H_0 t} \hat{Q} e^{-\frac{i}{\hbar} H_0 t}$$

Dans cette représentation l'équation d'évolution de la matrice densité devient :

$$\frac{d\sigma^*}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_1^*(t), \sigma^*(t)] \quad (5.6)$$

En intégrant 5.6 au deuxième ordre en perturbation, il vient :

$$\frac{d\sigma^*}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_1^*(t), \sigma^*(0)] - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t [\hat{H}_1^*(t), [\hat{H}_1^*(t'), \sigma^*(0)]] dt' \quad (5.7)$$

Il faut maintenant prendre la moyenne d'ensemble de 5.7. Ceci peut sembler étonnant car la notion d'opérateur densité est déjà attachée à une moyenne statistique du système. Mais c'est là la simple prise en compte du caractère probabiliste de la mécanique quantique. Dans notre cas, l'opérateur de perturbation $\hat{H}_1(t)$ est lui-même aléatoire, avec des histoires différentes pour chaque mesure, ce qui confère à la matrice densité σ^* un caractère tout aussi aléatoire. En particulier, la composante transverse du spin électronique, qui est non nulle car $P_c < 100\%$, n'est pas contrôlée lors de la relaxation de l'électron photocréé, vers l'état fondamental de la boîte quantique. On peut en particulier considérer que le spin de l'électron précesse autour du champ total auquel contribue l'ensemble des noyaux de la boîte. La composante transverse de ce champ a clairement une nature aléatoire (avec un temps de corrélation long de l'ordre de T_2) avec une moyenne nulle.

Une conséquence de cette nouvelle moyenne d'ensemble est que le terme du premier ordre $[\hat{H}_1^*(t), \sigma^*(0)]$ disparaît puisqu'alors $\hat{H}_1(t)$ a une moyenne nulle. Par ailleurs en faisant l'hypothèse d'un temps de corrélation court de $h_1(t)$ par rapport au temps typique d'évolution des éléments de matrice de l'opérateur densité, on peut intégrer la perturbation au deuxième ordre jusqu'à l'infini puisque l'intégrale donne une contribution non négligeable uniquement pour la condition $|t - t'| \leq \tau_c$. Il vient alors :

$$\frac{d\bar{\sigma}^*}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^\infty \overline{[\hat{H}_1^*(t), [\hat{H}_1^*(t - \tau), \sigma^*(t)]]} d\tau \quad (5.8)$$

De cette expression, on peut d'ores et déjà dégager un temps d'évolution caractéristique du mécanisme de polarisation dynamique des noyaux produit par le terme flip-flop en considérant que l'intégrande de 5.8 est nul au delà de τ_c :

$$\frac{1}{T_{1e}^j} \sim \left(\frac{A^j}{N\hbar} \right)^2 f_e \tau_c \quad (5.9)$$

Équation d'évolution macroscopique du spin moyen : pour un ensemble macroscopique de systèmes identiques {noyau j + électron}, l'évolution de l'opérateur \hat{I}_z^j , ou plus précisément de sa moyenne d'ensemble $\langle \hat{I}_z^j \rangle^* = Tr [\bar{\sigma}^*(t) I_z^j]$ s'obtient en multipliant l'équation 5.8 par \hat{I}_z et en prenant la trace, il vient alors :

$$\frac{d\langle I_z^j \rangle^*}{dt} = -Tr [A_z^j \sigma^*] = -\langle A_z^j \rangle \quad (5.10)$$

où

$$A_z^j = \frac{1}{\hbar^2} \int_0^\infty \overline{[\hat{H}_1^*(t), [\hat{H}_1^*(t - \tau), I_z^j]]} d\tau \quad (5.11)$$

L'équation 5.10 donne l'évolution de $\langle \hat{I}_z \rangle^*$, cependant comme \hat{I}_z^j commute avec \hat{H}_0 par construction, l'évolution de $\langle I_z^j \rangle$ est régie par exactement la même équation. Dans la section suivante, nous allons utiliser ce résultat pour exprimer le temps caractéristique de la relaxation électron-noyau, qui aboutit à l'établissement d'une polarisation nucléaire, en fonction des paramètres qui décrivent l'interaction hyperfine.

5.2.3 Détermination du temps de construction de la polarisation nucléaire

On ne considère dans cette partie que le terme "flip-flop" de l'interaction hyperfine : $H_{f.f.}(t) = \frac{A^j}{N} [\hat{I}_+^j \hat{S}_- + \hat{I}_-^j \hat{S}_+] h_1(t)$ dans l'approximation d'une fonction enveloppe de l'électron uniforme sur les N noyaux de la boîte quantique. Pour poursuivre les calculs, il nous faut la représentation d'interaction de $\hat{H}_{f.f.}(t)$ ([11] p.23) qui est :

$$H_{f.f.}^*(t) = \frac{A^j}{N} [\hat{I}_+^j S_- e^{i(\omega_{Ij} - \omega_s)t} h_1(t) + \hat{I}_-^j S_+ e^{-i(\omega_{Ij} - \omega_s)t} h_1(t)] \quad (5.12)$$

En remplaçant 5.12 dans 5.11, on a :

$$\begin{aligned} \frac{d\langle I_z^j \rangle}{dt} = & -\frac{1}{2} \left(\frac{A^j}{N\hbar} \right)^2 J(\omega_{Ij} - \omega_s) \left(e^{2i(\omega_{Ij} - \omega_s)t} \langle [I_+^j S_-, [I_+^j S_-, I_z^j]] \rangle \right. \\ & \left. + \langle [I_+^j S_-, [I_-^j S_+, I_z^j]] \rangle + h.c. \right) \end{aligned} \quad (5.13)$$

où

$$J(\omega) = T.F. \left[\overline{h_1(t)h_1(t-\tau)} \right] = 2 \int_0^\infty g(\tau) e^{-i\omega\tau} d\tau \quad (5.14)$$

est la densité spectrale de la fonction d'auto-corrélation $g(\tau)$, qui pour l'expression choisie pour $g(\tau)$ donne :

$$J(\omega) = \frac{2f_e\tau_c}{1 + \omega^2\tau_c^2} \quad (5.15)$$

L'équation 5.13 est une équation différentielle à coefficients non-constants. Cependant, si l'on compare le temps d'évolution des termes dépendant explicitement du temps, au temps typique d'évolution du système⁶ :

$$|\omega_{Ij} - \omega_s| \gg \frac{1}{T_{1e}^j} \quad (5.16)$$

on constate que les termes en exponentielle modulent très rapidement et très faiblement l'évolution principale basse fréquence en $1/T_{1e}^j$. Ils donnent une contribution moyenne nulle, on peut donc les négliger (il s'agit de l'approximation séculaire⁷). Dans cette approximation, comme on va le voir, l'équation 5.13 devient une équation différentielle à coefficients constants. De plus, comme $[I_+^j S_-, [I_-^j S_+, I_z^j]] = [I_-^j S_+, [I_+^j S_-, I_z^j]]$, on peut réécrire plus simplement 5.13 :

$$\frac{d\langle I_z^j \rangle}{dt} = - \left(\frac{A^j}{N\hbar} \right)^2 J(\omega_{Ij} - \omega_s) \langle [I_-^j S_+, [I_+^j S_-, I_z^j]] \rangle \quad (5.17)$$

Reste à calculer le double commutateur dans 5.17 en utilisant les relations usuelles de commutation des composantes de moment cinétique⁸. On trouve alors :

$$[I_-^j S_+, [I_+^j S_-, I_z^j]] = 2 [S_- S_+ I_z^j - I_-^j I_+^j S_z] \quad (5.18)$$

⁶Il y a au moins 6 ou 7 ordre de grandeur entre ces deux termes

⁷On trouvera une justification plus précise fondée sur des arguments équivalents dans [12] p.269

⁸ $[J_z, J_+] = J_+$, $[J_z, J_-] = -J_-$, $[J_+, J_-] = 2J_z$

Il faut maintenant calculer les moyennes $\langle S_- S_+ I_z^j \rangle$ et $\langle I_-^j I_+^j S_z \rangle$. Ceci mérite quelques lignes de développement. Considérons la moyenne $\langle I_-^j I_+^j S_z \rangle$ qui peut se réécrire en $\langle I_-^j I_+^j \rangle \langle S_z \rangle$. Le développement de $\langle I_-^j I_+^j \rangle$ donne $\langle I_x^j \rangle + \langle I_y^j \rangle + i \langle I_x^j I_y^j \rangle + i \langle I_y^j I_x^j \rangle$ où les moyennes des produits croisés sont nulles car les fluctuations selon x et y sont statistiquement indépendantes. En supposant égales les variances $\sigma_k^2 = \langle I_k^j \rangle^2 - \langle I_k^j \rangle^2$ associées aux trois composantes $k = x, y, z$ du spin et en admettant que les valeurs moyennes $\langle I_x^j \rangle$ et $\langle I_y^j \rangle$ sont nulles, on obtient l'expression suivante :

$$\sigma^2 = \frac{1}{3} I^j (I^j + 1) \left(1 - \frac{\langle I_z^j \rangle^2}{I^j (I^j + 1)} \right) \quad (5.19)$$

Se pose alors la question de la valeur moyenne $\langle I_z^j \rangle$ dans les conditions de pompage optique. Généralement on peut utiliser l'approximation des hautes températures de spin nucléaire qui se traduit par une faible polarisation ($\langle I_z^j \rangle / I \ll 1$)⁹. L'équation 5.19 se simplifie et il est maintenant aisé d'en déduire

$$\langle I_-^j I_+^j S_z \rangle \simeq \frac{2}{3} I^j (I^j + 1) \langle S_z \rangle$$

Pour le spin $S = 1/2$ de l'électron, les variances de $\langle \hat{S}_x \rangle$ et $\langle \hat{S}_y \rangle$ étant exactement égales à $1/4$ on obtient sans approximation :

$$\langle S_- S_+ I_z^j \rangle = \frac{2}{3} S(S+1) \langle I_z^j \rangle$$

Finalement l'équation d'évolution de l'observable I_z^j est :

$$\frac{d\langle I_z^j \rangle}{dt} = -\frac{4}{3} \left(\frac{A^j}{N\hbar} \right)^2 S(S+1) J(\omega_{I^j} - \omega_s) [\langle I_z^j \rangle - Q^j \langle S_z \rangle] \quad (5.20)$$

où l'on a introduit comme au chapitre précédent le facteur $Q^j = I^j (I^j + 1) / S(S+1)$. Comme le splitting Zeeman nucléaire est négligeable devant celui de l'électron, on peut systématiquement négliger ω_{I^j} devant ω_s . En utilisant l'expression de la densité spectrale $J(\omega)$, l'équation 5.20 se met alors sous la forme :

$$\frac{d\langle I_z^j \rangle}{dt} = - \left(\frac{A^j}{\hbar N} \right)^2 \frac{2f_e \tau_c}{1 + \omega_s^2 \tau_c^2} [\langle I_z^j \rangle - Q^j \langle S_z \rangle] \quad (5.21)$$

L'expression ainsi obtenue permet de retrouver la valeur d'équilibre $Q^j \langle S_z \rangle$ trouvée au chapitre précédent¹⁰ vers laquelle la composante I_z^j du spin nucléaire va tendre sous l'effet du pompage optique. Cependant l'expérience donne uniquement accès au déplacement Overhauser induit par *tous* les noyaux de la boîte, c'est-à-dire à $\delta_n = g_e \mu_B B_n \simeq \sum_j \frac{2A^j}{N} \langle I_z^j \rangle$. Il faut donc étendre cette équation à la moyenne des spins nucléaires de la boîte $\tilde{I}_z = \sum_j \frac{\langle I_z^j \rangle}{N}$ pour comparer aux expériences. En fait, dans l'approximation d'uniformité de la fonction enveloppe de l'électron utilisée ici ($|\psi(r_j)|^2 = 2/Nv_0$), la valeur moyenne du spin d'une espèce nucléaire ne dépend plus de sa position dans la boîte. Donc en introduisant le spin moyen de chaque type de noyau α

⁹C'est bien le cas dans nos mesures où l'on trouve une valeur de $\sim 10\%$

¹⁰où elle avait été établie dans la même approximation des hautes températures de spin.

le spin nucléaire moyen de la boîte s'écrit $\tilde{I}_z = \sum_{\alpha} x_{\alpha} \langle I_z^{\alpha} \rangle$, et on obtient facilement l'équation qui régit sa dynamique :

$$\boxed{\frac{d\tilde{I}_z}{dt} = -\frac{2f_e\tau_c}{1 + \omega_s^2\tau_c^2} \left(\frac{A}{N\hbar}\right)^2 [\tilde{I}_z - \tilde{Q}\langle S_z \rangle]} \quad (5.22)$$

$$\text{avec } \tilde{Q} = \sum_{\alpha} x_{\alpha} \frac{I^{\alpha}(I^{\alpha}+1)}{S(S+1)}$$

Nous avons introduit dans 5.22 une constante de couplage hyperfin unique A dans la mesure où les différents valeur de A^{α} sont très similaires de l'ordre de $50 \mu\text{eV}$. Le taux de polarisation nucléaire de la boîte est donc le même que pour un noyau particulier. Il est donné par :

$$\boxed{\frac{1}{T_{1e}} = \frac{2f_e\tau_c}{1 + \omega_s^2\tau_c^2} \left(\frac{A}{N\hbar}\right)^2} \quad (5.23)$$

Cette expression va se révéler très utile pour comprendre les dépendances de l'effet Overhauser aux différents paramètres d'une expérience. Elle révèle en particulier le point remarquable que l'apparition d'une polarisation nucléaire influe directement sur le taux de construction de cette polarisation via le splitting des électrons $\hbar\omega_s$ qui est la somme algébrique de l'effet Zeeman et du déplacement Overhauser. Cet aspect sera discuté plus en détail lorsque nous analyserons la dépendance du shift Overhauser mesuré sur une boîte quantique unique en fonction du champ magnétique appliqué et de la polarisation de l'excitation.

5.2.4 Discussion de la physique du mécanisme de polarisation des noyaux

L'expression 5.22 nous montre que l'on peut atteindre des niveaux de polarisation des noyaux très élevés. Si tel était le cas dans les expériences, il faudrait alors revenir sur l'hypothèse des hautes température de spin. En fait, généralement ce n'est pas nécessaire car les polarisations nucléaires restent modestes. Pour décrire ce résultat, dont l'origine physique est sans doute multiple, on peut simplement compléter l'équation d'évolution de \tilde{I}_z (*i.e* de B_n) en introduisant un terme de fuite régi par un temps effectif T_d de dépolarisation :

$$\frac{d\tilde{I}_z}{dt} = -\frac{1}{T_{1e}} [\tilde{I}_z - \tilde{Q}\langle S_z \rangle] - \frac{\tilde{I}_z}{T_d} \quad (5.24)$$

L'intégration de 5.24 pour une polarisation nucléaire nulle initialement donne alors :

$$\tilde{I}_z(t) = \frac{T_d}{T_{1e} + T_d} \tilde{Q}\langle S_z \rangle \left[1 - e^{-t\left(\frac{T_d + T_{1e}}{T_{1e}T_d}\right)} \right] \quad (5.25)$$

L'équation 5.25 fait naturellement écho à celle que nous avons démontrée dans le chapitre précédent. Si $T_{1e} \gg T_d$, la valeur stationnaire de \tilde{I}_z s'éloigne de la valeur maximale théorique $\tilde{I}_z^{max} = \tilde{Q}\langle S_z \rangle$ d'un facteur T_d/T_{1e} . Le temps effectif de construction de la polarisation du système nucléaire réel devient quant à lui :

$$\frac{1}{T^*} = \frac{1}{T_{1e}} + \frac{1}{T_d} \quad (5.26)$$

Dans les conditions où T_d est petit devant T_{1e} , il est donc raccourci, ce qui signifie simplement que l'on atteint plus rapidement la valeur stationnaire donnée par 5.25 qui est notablement plus faible qu'en l'absence de dépolarisation. Pour autant, ce régime stationnaire peut être modifié si on parvient à modifier le rapport T_d/T_{1e} . Par exemple, nous avons déjà montré que l'effet Overhauser des boîtes quantiques est croissant avec la puissance d'excitation (c.f. figures 5.11 et 5.12), traduisant probablement le fait que le taux de polarisation $1/T_{1e}$ augmente avec la puissance, grâce au facteur f_e dans 5.23.

Quelques mots sur les mécanismes de dépolarisation

Nous venons d'introduire un temps effectif de dépolarisation nucléaire T_d . Les mécanismes de dépolarisation contenus dans ce temps effectif, méritent d'être discutés. De manière assez générale, on peut le décomposer en plusieurs termes :

$$\frac{1}{T_d} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_{\text{autre}}} \quad (5.27)$$

où T_1 et T_2 sont les temps de relaxation, déjà discutés au chapitre précédent, respectivement vers le réseau et entre les noyaux par couplage dipolaire. Le temps le plus court T_2 est cependant proportionnel à $(B/\tilde{B}_L)^2$, dans le régime où $B > \tilde{B}_L$, ce qui signifie qu'un champ de quelques dizaines de mT doit considérablement le rallonger et rendre le mécanisme de dépolarisation associé inopérant. D'autres mécanismes méritent donc d'être pris en considération pour expliquer les faibles polarisations mesurées.

- ◇ **Effets quadrupolaires.** La substitution d'atomes de Gallium par des atomes d'Indium brise la symétrie des sites As voisins et induit une distorsion locale du cristal. Ceci a pour conséquence une redistribution de la charge dans les liaisons chimiques $As \rightarrow Ga$ et $As \rightarrow In$, générant un gradient local de champ électrique sur le site As. Celui-ci interagit avec les différents états du spins nucléaires par l'interaction quadrupolaire [13, 11, 14]. Dans le cristal de GaAs, où l'atome d'As voit quatre atomes de Ga équivalents, l'interaction quadrupolaire est nulle. Ceci pourrait, en partie, expliquer la faible polarisation nucléaire constatée pour les boîtes d'InAs, par rapport aux boîtes naturelles de GaAs. Comme l'interaction dipolaire entre noyaux, cette interaction peut être inhibée par le champ magnétique externe.
- ◇ **Fluctuations du champ Knight.** Le formalisme présenté dans la partie 5.2.2 peut être appliqué aux fluctuations du champ Knight en incluant dans \hat{H}_0 soit le couplage dipolaire soit les effets quadrupolaires. Ce travail est actuellement en cours de développement, mais il a déjà été démontré dans le cas des boîtes GaAs [9] qu'il conduisait effectivement à un mécanisme de dépolarisation efficace jusqu'à un champ de 80 mT. Un tel mécanisme est cependant dépendant de la puissance d'excitation au même titre que le terme source puisqu'il nécessite la présence d'un électron dans la boîte. Il ne suffirait donc pas à expliquer l'ensemble de nos résultats

Estimation expérimentale du temps de construction de la polarisation nucléaire T^* :

Nous n'avons pas pu effectuer jusqu'à présent la mesure précise de ce temps effectif. Nos expériences nous ont simplement révélé qu'il n'était ni très court ($> 10\mu s$), ni très long ($< 10s$). Examinons ici deux pistes pour déterminer expérimentalement ce temps :

- ◇ **Saturation des noyaux.** Cette technique qui est certainement la plus immédiate, consiste à "réchauffer" (ou saturer) les noyaux par un champ magnétique transverse radio-fréquence. Ce-faisant, il faut prendre garde à ce que le champ *r.f.* ne fasse pas relaxer le spin électronique. Cela impose que son amplitude soit petite, c'est à dire qu'il doit générer des variations de splitting Zeeman sur l'électron beaucoup plus faibles que le splitting induit par le champ statique longitudinal. Le spectre de fréquences du champ *r.f.* doit quant à lui contenir les fréquences de résonance associées au ^{69}Ga et ^{75}As pour le champ magnétique appliqué selon l'axe optique (*c.f.* 5.14b). Sous excitation optique, D. Gammon *et al.* ont ainsi mesuré, sur une boîte unique de fluctuation d'interface de GaAs la fréquence de la rampe de champ transverse pour laquelle le splitting excitonique diminue [9]. Comme le montre la figure 5.14a, dans ce cas T^* a été estimé à 3 secondes.¹¹

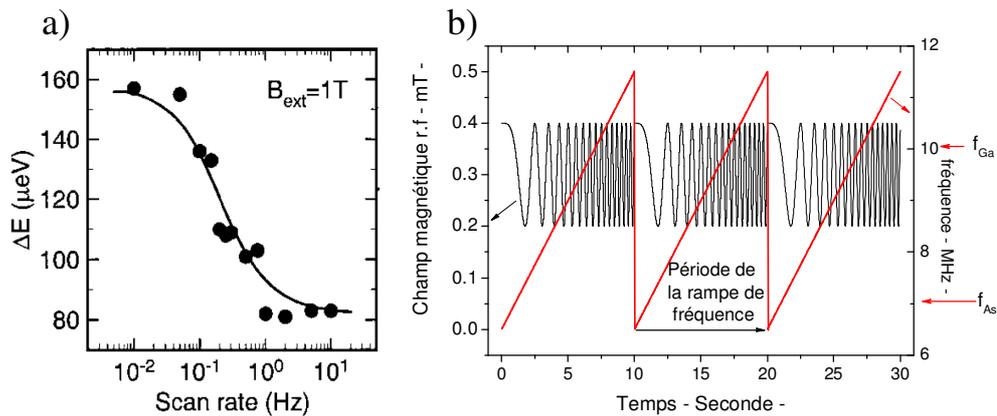


FIG. 5.14: a) Splitting d'un exciton en fonction de la fréquence de modulation des rampes de fréquence d'un champ *r.f.* transverse. Le champ longitudinal statique est de 1 T. b) Schéma illustrant la modulation de fréquence du champ magnétique. L'amplitude moyenne du champ transverse est de 0.3 mT. Issu de [9]

- ◇ **Modulation de la polarisation optique.** La méthode précédente agissait directement sur les spins des noyaux en activant leur dépolarisation. Une autre technique consiste à agir sur le spin de l'électron pour contrôler le terme source de la polarisation nucléaire. En modulant la polarisation circulaire de l'excitation, le système nucléaire ne peut suivre les variations du spin électronique sur une durée plus courte que T^* . La fréquence de coupure pour laquelle le shift Overhauser s'annule donne alors une estimation du

¹¹Cette configuration expérimentale est bien-sûr la même que les expériences de R.M.N. Ces auteurs ont montré que le shift Overhauser en fonction de fréquence r.f. peut ainsi servir de "spectroscopie" R.M.N ; les résonances nucléaires de ^{75}As et ^{69}Ga ont été observées de cette manière [15]

taux effectif de pompage optique des noyaux. Cette technique pourrait être développée avec une lame quart d'onde en rotation à une fréquence variable. Dans ces conditions d'excitation, la mesure du déplacement Overhauser sur une boîte unique s'avère un peu plus délicate, étant donnée la durée minimale d'intégration de ~ 10 s pour obtenir avec une caméra CCD un spectre de photoluminescence correct. Il est sans doute nécessaire de synchroniser alors la détection sur la modulation. Une autre solution consisterait à mesurer l'évolution du splitting Zeeman mesuré en polarisation linéaire en continu mais dans un champ magnétique suffisamment fort (par exemple 1T) pour bien distinguer les deux composantes et leur largeur de raie. Avec une telle modulation mécanique on est limité à des fréquences inférieures au kHz, mais le principe de la mesure peut être étendu à des domaines de fréquence plus élevées en utilisant par exemple une cellule de Pockels.

Une des premières expériences que nous avons réalisées après l'observation de l'effet Overhauser sur une boîte optique a eu pour but de mettre en évidence un éventuel temps long de l'ordre de la dizaine de secondes pour T^* . La boîte est excitée σ^+ (σ^-) pendant 15 minutes à forte puissance, puis on "bascule" l'excitation en σ^- (σ^+) en diminuant la puissance de pompe. Si le temps typique d'évolution est un peu plus long que le temps d'acquisition, on s'attend à voir une évolution progressive du déplacement Overhauser. La figure 5.15 montre clairement qu'à l'échelle temporelle de l'acquisition CCD (ici un spectre toutes les 8 s), le renversement du shift Overhauser suit immédiatement le changement de la polarisation d'excitation et ne montre plus d'évolution temporelle.

Par ailleurs, la modulation de la polarisation de l'excitation à 50 kHz avec un modulateur photo-élastique nous a permis de montrer en suivant l'impact sur la polarisation de la photoluminescence (voir chapitre suivant), qu'à cette fréquence toute polarisation nucléaire a disparue. Cependant, le modulateur n'étant pas accordable en fréquence, nous n'avons pas pu estimer par la méthode évoquée au dessus un temps typique de polarisation nucléaire.

Au final, on peut donc dire d'après nos études que le temps typique de la construction de la polarisation T^* se trouve entre $20 \mu s$ et quelques secondes. Ce temps aurait été mesuré à environ 1 seconde pour une boîte InAs dans l'équipe de A. Imamoglu [10] et un effet mémoire attribué à la polarisation des noyaux jusqu'à environ 0.2 s a aussi été récemment rapporté par A. Greilich par des mesures sur un ensemble de boîtes quantiques InAs *et al.* [16].

Conservation de l'énergie au cours du flip-flop

L'expression de T_{1e}^{-1} fait apparaître le produit $(\omega_s \tau_c)^2$ traduisant la compétition entre le splitting de l'électron $\delta_s = \hbar \omega_s$ et l'énergie $\Gamma = \hbar / \tau_c$ associée au temps de corrélation de l'interaction hyperfine. Ce temps joue à l'évidence un rôle central. C'est lui qui exprime le caractère aléatoire de l'interaction hyperfine dû entre autre à la durée de vie finie de l'électron, soit qu'il se recombine avec un trou (cas de X^+), soit qu'un second électron vienne du réservoir pour former une paire singulet (cas de l'état final de X^-). De manière générale, Γ correspond donc à l'élargissement des niveaux électroniques impliqués dans le mécanisme flip-flop et dû au couplage à un

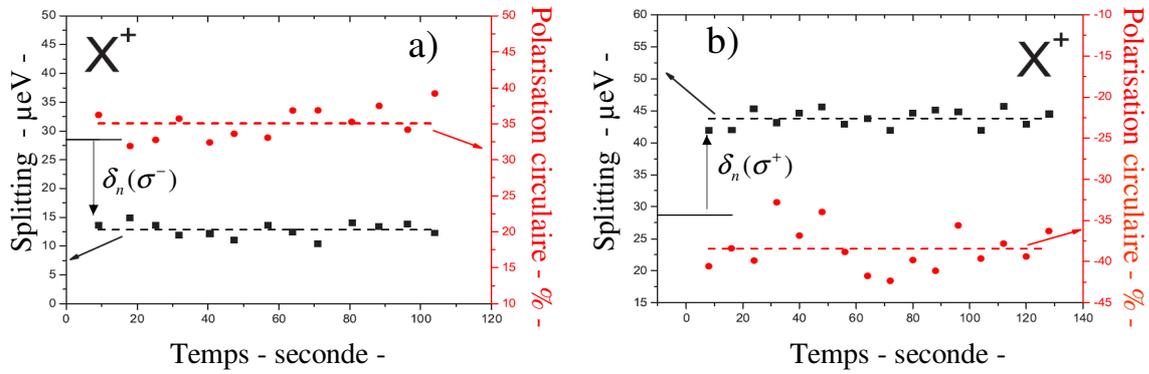


FIG. 5.15: a) Excitation σ^- . Evolution du splitting Zeeman après un pompage σ^+ d'un quart d'heure. b) Excitation σ^+ . Evolution du splitting Zeeman après un pompage σ^- d'un quart d'heure. Le champ magnétique appliqué est de 0.2 Tesla. Echantillon p-i-Schottky

continuum. C'est donc par ce biais que la conservation de l'énergie est assurée, comme l'illustre la figure 5.16. L'optimum du pompage des noyaux pour un splitting donné δ_s est ainsi obtenu lorsque $\omega_s \tau_c = 1$, c'est à dire lorsque le temps de corrélation est de l'ordre de grandeur de la période de précession de Larmor de l'électron.

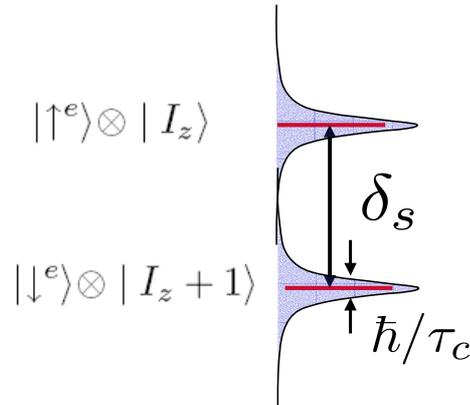


FIG. 5.16: Représentation des deux états couplés par l'interaction hyperfine séparés par l'énergie δ_s . Les niveaux sont élargies par \hbar/τ_c .

Maintenant, on comprend mieux comment le splitting d'un exciton neutre entre états noirs et brillants intervient pour inhiber la polarisation dynamique des noyaux. Comme le montre la figure 5.17, nous devons prendre en compte dans le splitting des électrons, en plus des contributions du champ magnétique et nucléaire, l'énergie d'échange δ_0 qui s'élève à quelques centaines de μeV pour les boîtes InAs. Dans le même temps, si on considère que τ_c est de l'ordre de grandeur du temps de vie radiative τ_r de X^0 (brillant), on aboutit à une situation nettement

plus défavorable que dans le cas des boîtes GaAs comme le résume le tableau ci-dessous.

boîte quantique	InAs/GaAs	fluctuation d'interface GaAs
δ_0	~ 0.5 meV	~ 0.1 meV
τ_r	~ 1 ns	~ 0.1 ns

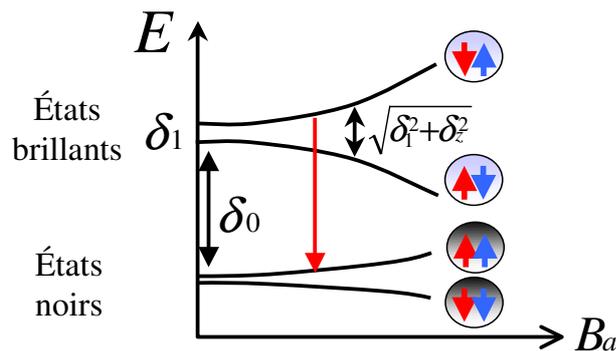


FIG. 5.17: Transition exciton brillant vers exciton noir via le spin flip de l'électron avec un noyau

5.3 Dépendance du déplacement Overhauser avec la tension de grille

L'évolution du splitting de spin des trions en fonction de la tension de grille montre des tendances assez prononcées comme l'indique la figure 5.18b. Le splitting Zeeman induit par le seul champ magnétique appliqué est représenté par le trait en tirets. Pour X^+ , plus la tension diminue (et donc le champ électrique augmente), plus la valeur absolue du shift Overhauser est grande ; pour X^- , cette dernière présente une allure en cloche : elle passe par un maximum puis retombe à zéro.

Comme le champ électrique contrôle les processus de formation des trions et dans une certaine mesure leur temps de vie une fois formés [18, 19, 10], ces évolutions traduisent probablement l'influence du temps de résidence de l'électron dans la boîte (intimement lié à τ_c) sur la construction de la polarisation des noyaux. Notamment, le fait que la polarisation circulaire de X^+ reste quasiment constante $|P_c(X^+)| \sim 70\%$, nous invite à penser que l'évolution du shift Overhauser est principalement pilotée par celle de τ_c . Nous avons déjà évoqué qualitativement l'idée (un peu contre-intuitive) que plus le temps de résidence de l'électron est court, plus le processus de polarisation dynamique des spins nucléaires est efficace. L'expression de T_{1e} nous a montré que cette condition était en effet imposée par la conservation de l'énergie des transitions "flip-flop". Cette conclusion n'est cependant vraie que dans la limite où le temps de corrélation τ_c de l'électron reste de l'ordre de grandeur de la période de précession ω_s^{-1} du spin

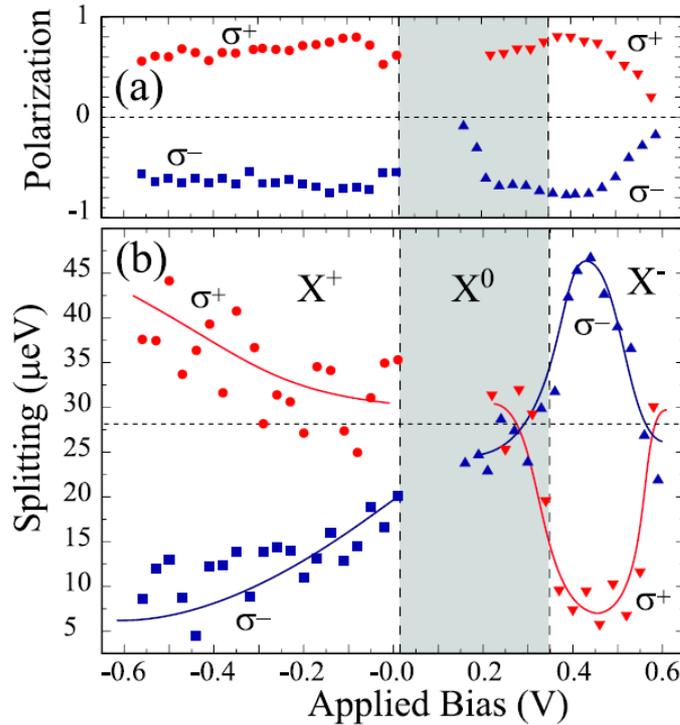


FIG. 5.18: Évolution avec la tension de la polarisation circulaire de la photoluminescence de X^+ et X^- (a), et de leur splitting de spin (b). En rouge excitation σ^+ , en bleu excitation σ^- . La zone ombrée représente le domaine de stabilité de X^0 . Le champ magnétique appliqué est de 0.2 Tesla. L'énergie d'excitation est à 1.31 eV [17].

électronique ¹². Pour un temps de corrélation extrêmement court ($\omega_s \tau_c \ll 1$), il n'y a certes plus de problème de conservation de l'énergie, mais la probabilité du flip-flop T_{1e}^{-1} décroît alors comme τ_c pour un taux de pompage ($\propto f_e$) constant. Examinons plus en détail comment le champ électrique peut agir sur le déplacement Overhauser des boîtes quantiques par ce biais :

- ◇ **Trion X^+** : le champ électrique augmente quand on diminue la tension et ouvre de ce fait un canal d'échappement tunnel efficace pour l'électron. Cet effet est clairement observé sur les mesures résolues en temps présentées au chapitre 3. Le temps de corrélation de l'électron photocréé diminue alors selon :

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{1}{\tau_c^0} + \frac{1}{\tau_{tunnel}}$$

¹²Cette condition est a priori réalisée pour les boîtes quantiques $\tau_c \sim 1$ ns, mais pour les électrons localisés sur des donneurs, les temps de corrélation est fortement limité par un temps de vie radiatif court et par le transfert tunnel entre donneurs. Ceci pourrait expliquer que le temps typique de construction de la polarisation nucléaire est de l'ordre de la seconde pour les boîtes quantiques, et de plusieurs heures dans les matériaux massifs.

renforçant ainsi le processus de polarisation dynamique. Ceci s'accompagne donc d'une augmentation (en valeur absolue) du shift Overhauser.

- ◇ **Trion X^-** : Comme la polarisation des noyaux est induite par l'électron résident laissé seul après recombinaison, le temps de corrélation de ce dernier est lié au temps de capture d'un nouvel électron de dopage par la boîte quantique. En effet, à partir de 0.35 Volt où il n'y a plus coexistence de X^0 avec X^- , la boîte maintient en permanence sa charge à deux électrons. Cela signifie que le réservoir dopé réalimente la boîte rapidement après la recombinaison de X^- , et en conséquence $\tau_c^{X^-}$ diminue quand la tension augmente. Cet argument permet de comprendre qualitativement la montée de la courbe en cloche du déplacement Overhauser entre 0.35 V et 0.45 V, alors que dans le même temps la polarisation circulaire de la photoluminescence reste essentiellement constante. Au delà, le couplage tunnel entre la boîte et le réservoir dopé devient encore plus fort réduisant probablement le temps de corrélation sous le seuil fatidique ω_s^{-1} à partir duquel le taux de flip-flop diminue¹³, ce qui entraîne la chute observée de la polarisation nucléaire. Un processus concomitant qui contribue à la chute de la polarisation nucléaire est la forte diminution de la polarisation circulaire induite probablement par l'interaction d'échange électron-trou (*c.f.* Chap. 3).

Vers une étude quantitative : Afin d'étudier quantitativement la polarisation dynamique des noyaux, il faut prendre en compte leur dépolarisation et donc utiliser la solution stationnaire de 5.24. Le déplacement Overhauser que l'on mesure est alors donné par :¹⁴

$$\delta_n = \frac{-\tilde{\Delta} \langle S_z \rangle}{1 + \kappa [\Gamma^2 + \delta_s^2]} \quad (5.28)$$

où

$$\tilde{\Delta} = 2A\tilde{Q} \quad (5.29)$$

$$\kappa = \frac{\tau_c}{2f_e T_d} \left(\frac{N}{A} \right)^2 \quad (5.30)$$

L'équation 5.28 est intéressante à plus d'un titre :

- ◇ A première vue la relation entre δ_n et la polarisation de spin $\langle S_z \rangle$ semble linéaire, avec toutefois un facteur de réduction lié d'une part au mécanisme de dépolarisation qui donne une valeur finie au terme κ , et d'autre part à l'ajout de la largeur des niveaux $\Gamma = \hbar/\tau_c$ au splitting δ_s de l'électron.

¹³On relève d'ailleurs pour ces tensions une augmentation des largeurs de raie qui deviennent alors mesurables en photoluminescence de l'ordre de 100 μeV .

¹⁴On le définit ici comme $\delta_n = -2A\tilde{I}_z$, le signe négatif ayant été rajouté par convention pour que sous excitation σ^+ qui crée un électron de spin S_z négatif, le shift Overhauser ait le même signe que le splitting Zeeman. Quand la boîte est excitée avec un photon σ^+ dans l'état de charge X^+ , δ_n est positif et dans l'état X^- , δ_n est négatif.

- ◇ En fait, cette relation ne définit que de manière implicite le shift Overhauser δ_n puisque le splitting total électronique δ_s qui apparaît au dénominateur résulte de la contribution du champ appliqué et du champ nucléaire, à savoir $\delta_s = g_e \mu_B B + \delta_n$. Cette rétroaction du champ nucléaire va être source de fortes non-linéarités du système donnant lieu entre autre à un régime de bistabilité décrit plus loin.
- ◇ Comme en pratique, la polarisation nucléaire est largement inférieure à sa valeur maximale on doit pouvoir négliger le 1 du dénominateur. On aboutit alors à une expression qui rend directement compte de l'effet des différents paramètres (N, T_d, f_e, \dots) :

$$\delta_n = \frac{-2f_e T_d \tau_c \tilde{\Delta} \langle S_z \rangle}{1 + (\omega_s \tau_c)^2} \left(\frac{A}{\hbar N} \right)^2 \quad (5.31)$$

L'équation 5.28 permettrait d'ajuster les résultats expérimentaux de 5.18, cependant $\tau_c, \langle S_z \rangle$ et potentiellement T_d ¹⁵, sont susceptibles de varier avec la tension, rendant difficile un accord théorie/expérience. Cependant, comme on va le voir, l'équation 5.28 peut être confrontée à l'expérience quand la tension de grille est fixe, auquel cas le paramètre κ est constant et devient ainsi une variable d'ajustement.

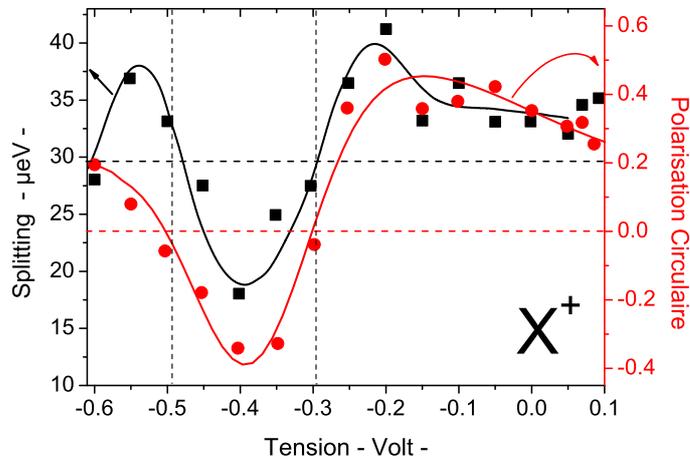


FIG. 5.19: Évolution avec la tension du splitting de spin de X^+ . Le champ magnétique appliqué est de 0.2 Tesla. L'énergie d'excitation est à ~ 1.34 eV et le pompage optique est σ^+ .

Mais avant d'aller plus loin, discutons un résultat expérimental qui traduit de manière qualitative l'évolution du déplacement Overhauser avec la polarisation circulaire de X^+ , en accord avec 5.28. Pour une excitation proche de 1.34 eV, on observe sur la même boîte quantique, que le signe de la polarisation circulaire de X^+ peut changer de signe sur une certaine plage de tension comme le montre la figure 5.19. Ce phénomène apparaît dans une fenêtre d'énergie

¹⁵Les contributions quadrupolaires à T_d pouvant être contrôlées par un champ électrique ou par les contraintes [20]

d'excitation excessivement étroite visiblement associé à une résonance du spectre d'absorption ; nous n'avons pas poussé plus loin les investigations pour comprendre ce mécanisme d'inversion de la polarisation ¹⁶ En revanche, on constate avec satisfaction que le signe du déplacement Overhauser suit les changements de signe de la polarisation circulaire de la luminescence de X^+ , illustrant encore une fois que c'est bien l'électron sur le niveau fondamental de la boîte et dont on mesure le spin lors de sa recombinaison radiative qui détermine la polarisation nucléaire.

5.4 Non-linéarités de la polarisation dynamique des spins nucléaires

Dans cette partie, nous allons mettre en lumière les conséquences de la non-linéarité présente dans l'équation implicite 5.28, rendant compte que le splitting du spin électronique dépend du champ total $\vec{B} + \vec{B}_n$. Comme déjà mentionné dans ce chapitre, les expériences montrent qu'une polarisation circulaire particulière de l'excitation induit une polarisation nucléaire plus ou moins intense suivant son signe (σ^+ ou σ^-). Cette dissymétrie s'explique par la rétroaction du splitting électronique δ_s sur le déplacement Overhauser δ_n : en effet, $\delta_s = \frac{g_e}{g_{X^0}}\delta_z + \delta_n$ (où δ_z est le splitting Zeeman d'une paire électron-trou directement mesuré en excitation linéaire) augmente quand le champ Overhauser est parallèle au champ appliqué, et diminue dans la configuration inverse. La régulation du mécanisme d'interaction électron-noyaux fait en sorte qu'une augmentation de δ_s diminue la polarisation nucléaire et qu'une diminution de δ_s entraîne une augmentation. Il est donc plus difficile de polariser les noyaux dans une direction qui augmente le splitting δ_s qu'inversement en créant un champ nucléaire anti-parallèle au champ appliqué. Pour jouer sur les signes relatifs de δ_n par rapport à δ_z , il y a donc deux possibilités évidentes :

- ◇ Changer la polarisation circulaire de l'excitation à champ magnétique constant. C'est bien sûr comme cela que la dissymétrie du déplacement Overhauser a été révélée dès nos toutes premières mesures.
- ◇ Changer le sens du champ magnétique, c'est à dire dans notre cas retourner l'aimant permanent en gardant constante la polarisation circulaire de l'excitation.

5.4.1 Évolution du décalage Overhauser avec la polarisation électronique

Afin de vérifier expérimentalement la validité de la relation 5.28, nous avons, à tension fixe, tourné pas à pas la lame $\lambda/4$ définissant la polarisation d'excitation et mesuré à chaque position le déplacement Overhauser correspondant ainsi que la polarisation circulaire de la photoluminescence. Cette dernière est supposée mesurer la valeur du spin électronique $\langle S_z \rangle$ (à un facteur 2 près) qui entre dans l'équation 5.28. La figure 5.20 reporte ces deux mesures l'une

¹⁶Associée à cette inversion de polarisation, la formation d'excitons doublement chargés X^{2+} semble être une piste sérieuse pour répondre à cette question. Une investigation fine de la spectroscopie d'excitation de la photoluminescence sur toute une plage de tension semble nécessaire.

en fonction de l'autre. Deux séries ont été effectuées, l'une à -0.2 V pour X^+ , l'autre à $+0.4$ V pour X^- . La valeur du splitting électronique induit par le champ magnétique externe $\frac{g_e}{g_{X^0}}\delta_z$ est estimée à $\sim 7\mu\text{eV}$ ¹⁷. Les paramètres ajustables sont donc : $\tilde{\Delta}$, τ_c et enfin κ . Concrètement, lors de la phase d'ajustement¹⁸ seul κ est un paramètre libre et sans doute le plus crucial ; les deux autres paramètres sont contraints à rester dans un domaine réaliste : les mesures temporelles de la luminescence sur ensemble de boîtes semblent indiquer que $\tau_c(X^+)$ est de l'ordre de 500-600ps, tandis que $\tau_c(X^-)$ est estimé à quelques dizaines de picosecondes d'après [10, 19], quant à $\tilde{\Delta}$ qui est essentiellement un paramètre "matériau", il vaut environ 1.3 meV pour une composition réaliste de la boîte quantique¹⁹. La figure 5.20 rend compte du très bon accord

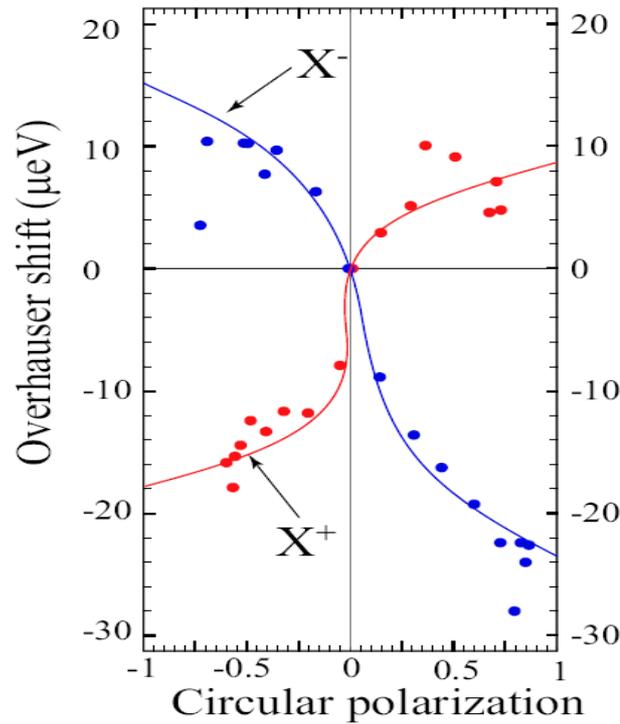


FIG. 5.20: Déplacement Overhauser en fonction de la polarisation circulaire de la photoluminescence, mesurés pour une polarisation de l'excitation variant pas à pas entre σ^+ et σ^- . Les lignes continues ont été tracées à partir de l'équation 5.28. Le champ magnétique appliqué est de 0.2 Tesla. L'énergie d'excitation est à ~ 1.31 eV [17].

théorie/expérience avec les paramètres d'ajustements reportés dans le tableau 5.4.1. Notamment, elle révèle bien la dissymétrie attendue. Par exemple, dans la configuration où le champ Overhauser est anti-parallèle au champ appliqué, la valeur absolue du décalage Overhauser

¹⁷La valeur typique de g_e pour les boîtes d'InAs est comprise entre 0.6 et 0.8 [6]

¹⁸pour réaliser l'ajustement, il est plus pratique de considérer la relation dans le sens $P_c(X^\pm) = \pm\delta_n \left(1 + \kappa (\hbar/\tau_c)^2 + (\frac{g_e}{g_{X^0}}\delta_z + \delta_n)^2 \right) \frac{2}{\tilde{\Delta}}$ qui est un polynôme de degré 3 en δ_n

¹⁹ $x_{Ga} \sim 0.2$, $x_{In} \sim 0.3$ et $x_{As} \sim 0.5$

	X^+	X^-
τ_c (ps)	600	60
$\kappa^{-\frac{1}{2}}$ (μeV)	1.8	3.8
$\tilde{\Delta}$ (meV)	1.3	1.3

TAB. 5.2: Valeurs des paramètres ajustables utilisées pour reproduire les mesures expérimentales de la figure 5.20

($\sim 25 \mu\text{eV}$ pour X^- et $\sim 18 \mu\text{eV}$ pour X^+) montre que l'électron "voit" un champ nucléaire B_n supérieur au champ appliqué (0.2 Tesla correspondant à un éclatement Zeeman de $\sim 7 \mu\text{eV}$).

5.4.2 Influence du sens du champ magnétique appliqué

Pour mettre en évidence l'effet du renversement du champ magnétique, nous avons placé un rail parallèle à l'axe optique derrière le cryostat sur lequel coulisse un ensemble de neuf aimants permanents²⁰. La distance entre la pile d'aimants et le cryostat permet ainsi de contrôler l'intensité du champ magnétique appliqué et il suffit de retourner l'aimant pour changer la direction du champ. L'étalonnage a été effectué en plaçant une sonde à effet Hall au point de focalisation du laser (en l'absence de cryostat). Lorsque les aimants sont "plaqués" contre la face arrière du cryostat, c'est à dire à environ 1 cm de l'échantillon, le champ magnétique au niveau de l'échantillon atteint 240 mT.

Nous avons étudié la même boîte quantique et sous les mêmes conditions d'excitation que précédemment (énergie d'excitation, puissance de pompe et tension : -0.2 V), dans le régime X^+ . Pour chaque valeur du champ, nous avons mesuré le déplacement Overhauser ainsi que la polarisation circulaire. La figure 5.21a montre clairement un effet dissymétrique, suivant l'orientation relative du champ appliqué et du champ Overhauser. Bien que les mesures soient un peu bruitées, on peut dégager quelques informations intéressantes :

- ◇ Le déplacement Overhauser est de signe constant puisque la polarisation circulaire de la luminescence (*c.f.* 5.21b) reste positive et voisine de 60%.
- ◇ Dans la configuration où \vec{B} et \vec{B}_n sont anti-parallèles (ici pour $B < 0$), le décalage Overhauser est plus important, que dans la configuration opposée *i.e* $B > 0$.
- ◇ Enfin, on peut aussi constater un effet assez fin sur la polarisation circulaire de X^+ : elle vaut environ 65% dans la situation \vec{B}_n et \vec{B} parallèles, alors qu'elle est de 60% dans le cas anti-parallèle. Cet effet, certes assez ténu, pourrait néanmoins être la première mise en évidence de l'influence du champ total $\vec{B} + \vec{B}_n$ ressenti par l'électron, sur sa relaxation de spin. Cet effet sera discuté plus en détail au chapitre suivant.

²⁰Cette mesure a été réalisée avant qu'un montage de micro-photoluminescence dans un cryostat magnétique à bobines "splittées" ne soit disponible au laboratoire.

Comme il s'agit de la même boîte, excitée dans les mêmes conditions que précédemment, nous pouvons a priori reprendre les paramètres d'ajustement que l'on avait déterminés (κ , τ_c et $\tilde{\Delta}$), pour reproduire cette dépendance au champ magnétique²¹. La courbe théorique est représentée dans 5.21a. Elle reproduit sans grande surprise la dissymétrie causée par l'inversion du champ, avec compte tenu du bruit des mesures, un assez bon accord qualitatif.

Enfin, il reste un dernier point qui mérite d'être discuté ici. La figure 5.21 montre que les

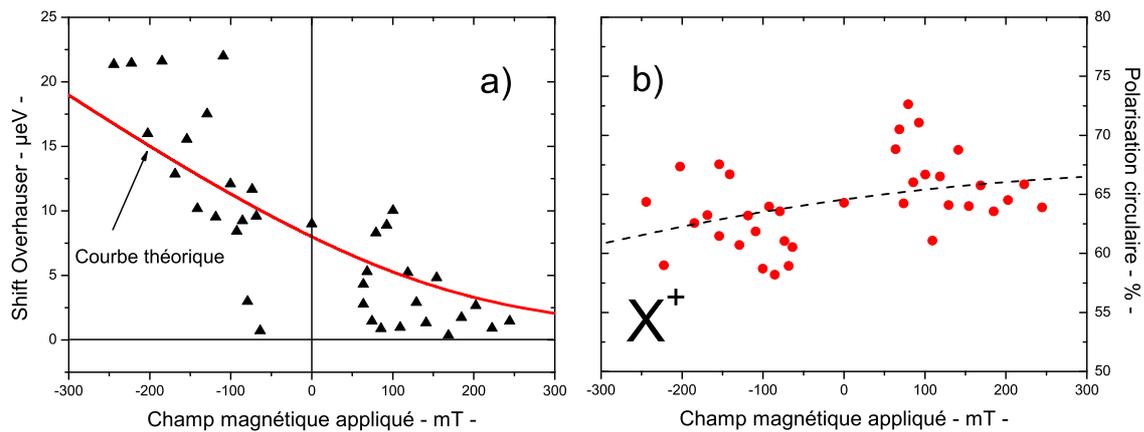


FIG. 5.21: a) Evolution du shift Overhauser en fonction du champ appliqué. b) Polarisation circulaire de X^+ . Polarisation d'excitation σ^+ et excitation à 1.31 eV.

noyaux sont polarisés à champ magnétique nul. Le point mesuré à $B = 0$ est tout-à-fait valide et sera confirmé par la suite. Cette observation soulève une question. Existe-t-il un champ résiduel dans le cryostat, champ qui est en principe requis pour pouvoir polariser les noyaux en écrantant leur interaction dipôle-dipôle ? Pour y répondre, nous avons placé une boussole²² contre le doigt froid (en cuivre mais chromé) du cryostat, mais nous n'avons pas observé de changement de direction de l'aiguille. Le principal champ magnétique pouvant potentiellement perturber nos mesures à champ nul est donc le champ magnétique terrestre²³, ce qui n'est pas entièrement exclu compte tenu de l'orientation de notre montage optique.

Toutefois, la polarisation nucléaire à champ nul a été mise en évidence par C. W. Lai *et al.* dans l'équipe d'A. Imamoglu à Zurich [10] sur boîte unique d'InAs. Ils ont interprété ce résultat comme résultant du champ Knight B_e créé par l'électron polarisé, champ qu'ils ont mis en évidence en variant très finement un champ magnétique longitudinal externe (c.f. chapitre suivant pour plus de précisions). Parallèlement, R. Oulton *et al.* ont mesuré un effet similaire sur ensemble de boîtes [16] dans une configuration Voigt (ou Hanle) du champ magnétique. Il semble donc que la polarisation nucléaire des boîtes quantiques puisse être un effet intrinsèque à ce système. Ce n'est pas en soi une découverte puisque qu'un tel effet est décrit dans un contexte

²¹Notons cependant que T_d et donc κ est hautement susceptible de dépendre du champ appliqué, et peut-être même de la polarisation nucléaire.

²²Une boussole est sensible à quelques centièmes de mT

²³Sa valeur est environ 0.06 mT à Marcoussis.

général par V. G. Fleisher et I. A. Merkulov dans l'ouvrage de référence *Optical Orientation* [14].

5.4.3 Bistabilité de la polarisation nucléaire dans le régime des forts champs magnétiques

Dans les deux sections précédentes, nous avons observé des effets non-linéaires dans le régime des faibles champs magnétiques $\sim 0.2 T$. Nous allons voir ici que lorsqu'on applique des champs beaucoup plus forts, le système nucléaire montre alors des effets plus surprenants comme la bistabilité. Les expériences qui vont être présentées ici, ont été réalisées par P.F Braun et B. Urbaszek [21] à Toulouse sur un échantillon p-i-Schottky épitaxié par A. Lemaître et processé par B. Eble.

La première expérience reportée sur la figure 5.22 montre la dépendance du shift Overhauser mesuré en fonction du champ appliqué parallèlement à l'axe optique. La mesure a été faite sur le trion positif d'une boîte quantique unique. Quand le champ Overhauser est parallèle au champ appliqué, on s'attend légitimement à une diminution du shift Overhauser, en augmentant le champ magnétique : le splitting total sur l'électron δ_s devient alors prépondérant, et donc les événements flip-flop sont de moins en moins fréquents pour assurer une polarisation nucléaire forte. C'est effectivement ce qu'on observe sur la figure 5.22 pour l'excitation σ^+ , mais uniquement pour des champs magnétiques inférieurs à $\sim 0.3 T$. Au delà de cette valeur, le shift Overhauser croît de nouveau avec le champ magnétique appliqué, en contradiction avec ce que l'on devrait attendre. Pour comprendre cela, on peut se reporter à l'équation 5.25, qui montre qu'en régime stationnaire :

$$\langle \tilde{I}_z \rangle = \tilde{Q} \langle S_z \rangle \frac{T_d}{T_{1e} + T_d} \quad (5.32)$$

Selon l'équation 5.32, la seule manière d'interpréter le comportement singulier du shift Overhauser avec le champ, est d'invoquer le fait que le temps de dépolarisation nucléaire T_d augmente beaucoup plus vite que le temps de construction nucléaire T_{1e} . Le champ magnétique participe alors à la suppression graduelle du ou des mécanismes de dépolarisation.

Rappelons que ces mécanismes ne sont pas bien identifiés, notamment dans les boîtes d'InGaAs. Néanmoins, la suppression partielle de la dépolarisation permet d'atteindre de très hautes valeurs de polarisation nucléaire : en excitation σ^- , le shift Overhauser s'élève à $\sim 70 \mu\text{eV}$ à 2 T, soit une polarisation nucléaire estimée à 30%. Dans ces conditions, le champ Overhauser estimé à $\sim 1.8 T$, est comparable avec le champ appliqué. Pour un tel champ magnétique, le système est en fait entré dans un régime de bistabilité. Cet effet est illustré sur la figure 5.23 qui montre la dépendance du shift Overhauser à la polarisation de la photoluminescence mesurée en variant pas à pas la polarisation de l'excitation de σ^+ à σ^- , puis de nouveau à σ^+ . La non-linéarité qui était déjà apparente sur nos mesures dans un faible champ de 0.2 T (c.f. Fig. 5.20) a évolué en un cycle d'hystérésis. Détaillons un peu ce comportement. Partant d'une polarisation circulaire nulle, le taux de flip-flop $\propto T_{1e}^{-1} \langle S_z \rangle$ est d'abord faible dans un champ de 2 T en raison du fort splitting Zeeman. En polarisant les noyaux de telle sorte que le champ nucléaire s'oppose au champ appliqué, on réduit alors progressivement le splitting de spin de l'électron et donc on

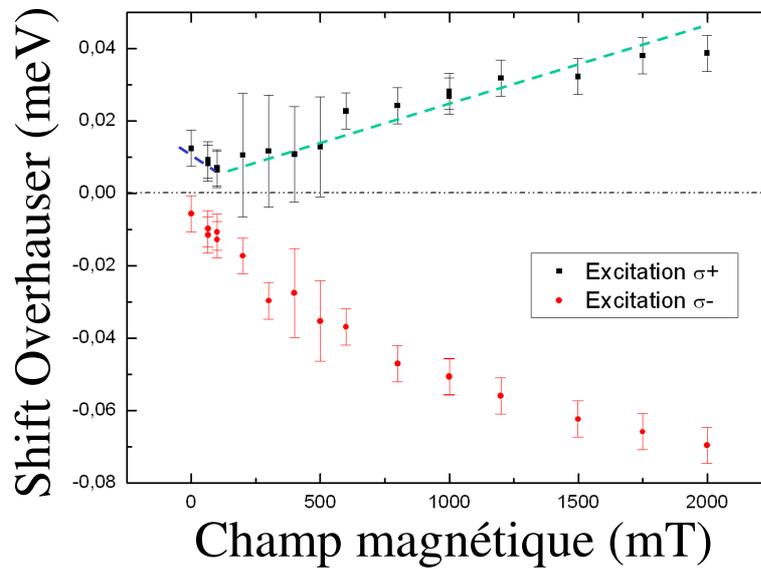


FIG. 5.22: Évolution du shift Overhauser de X^+ en fonction du champ magnétique, pour l'excitation σ^+ et σ^-

accélère la probabilité de flip-flop. C'est évidemment un processus qui s'amplifie lui-même, si bien que pour une certaine polarisation de l'excitation on bascule à une valeur du champ nucléaire qui doit excéder en valeur absolue celle du champ appliqué. À ce point le splitting de l'électron δ_s est très faible. Le champ Overhauser cesse cependant d'augmenter car les "fuites" de spin nucléaire $\propto \langle \tilde{I}_z \rangle / T_d$ deviennent alors importantes ($\langle \tilde{I}_z \rangle$ est grand !) tandis qu'une augmentation supplémentaire du champ nucléaire aurait pour effet de diminuer à nouveau T_{1e}^{-1} .

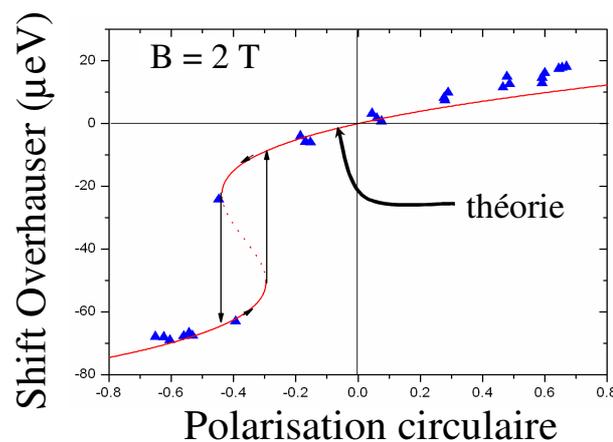


FIG. 5.23: Evolution du shift Overhauser de X^+ en fonction de la polarisation circulaire de la luminescence

Nous constatons que l'ajustement théorique par 5.28 décrit de manière excellente les points expérimentaux. Pour connaître les paramètres d'ajustement utilisés, le lecteur pourra se reporter à la référence [21]. Néanmoins, nous pouvons quand même préciser, que le temps de corrélation utilisé ici est de l'ordre de 50 ps. Ceci n'est pas surprenant : le temps de vie radiatif donne une limite supérieure au temps de corrélation, qui, nous l'avons vu précédemment donne de bons résultats pour l'échantillon n-i-Schottky, où la formation de X^+ est due uniquement à l'excitation optique. En ce qui concerne l'échantillon p-i-Schottky, le deuxième trou de ce complexe peut alternativement quitter la boîte, et y revenir via l'effet tunnel entre la boîte et le réservoir dopé-p ; ce qui peut contribuer à une diminution drastique du temps de corrélation. Mentionnons aussi que ce fit a permis à B. Urbaszek *et al.*, d'estimer le temps effectif de dépolariation T_d à environ 1 ms²⁴.

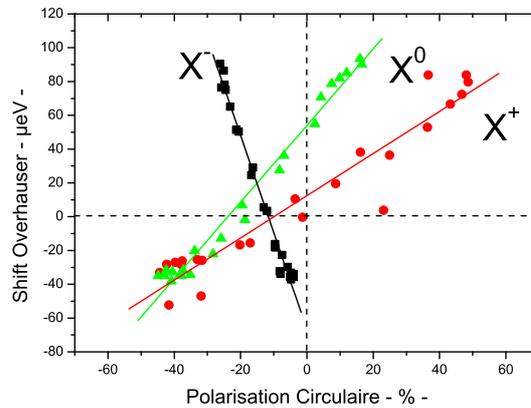


FIG. 5.24: Déplacement Overhauser en fonction de la polarisation circulaire pour les trions et l'exciton neutre d'une boîte de fluctuation d'interface GaAs. Champ appliqué de 5 Tesla. D'après [7]

Nous pouvons mettre en perspective ce que nous venons de voir avec les résultats de A. S. Bracker *et al.*[7], concernant les boîtes de fluctuation d'interface. La figure 5.24 qui reprend leurs données²⁵, montre les courbes $\delta_n = f(P_c)$ pour les différents états de charge X^- , X^+ et X^0 de la même boîte quantique, sous champ extérieur de 5 Tesla. Les courbes associées aux espèces X^- et X^0 ne passent pas en (0,0) : cela peut être dû à un artefact provenant de la détection circulaire, ou à une éventuelle rémanence du champ nucléaire. Ceci ne permet pas d'analyser proprement ces résultats à l'aide de notre modèle. Toutefois, il est frappant de constater que les courbes $\delta_n = f(P_c)$ possèdent une allure essentiellement linéaire. Par ailleurs, à notre connaissance aucune hystérésis n'a été reportée pour ce système ou pourtant la polarisation nucléaire est très forte. Ceci contraste nettement avec les courbes en "S", observées et décrites par notre modèle pour les boîtes InAs. Cette différence majeure pointe dans la direction de mécanismes de

²⁴Cette estimation suppose toutefois de faire une hypothèse sur la valeur du facteur d'occupation f_e .

²⁵Présentés sous une autre forme dans l'article[7].

dépolarisation nucléaire très faibles pour les boîte de fluctuation d'interface, expliquant à la fois les fortes polarisations nucléaires trouvées et la réponse linéaire constatée sur la figure 5.24.

Revenons aux expériences de B. Urbaszek *et al.* et examinons maintenant ce qui se passe quand le champ appliqué augmente tout en gardant fixe l'excitation optique (et sa polarisation). A nouveau, un phénomène de saturation bistable se manifeste, comme le montre la figure 5.25-gauche. On voit clairement le système nucléaire "sauter" d'une branche "forte polarisation nucléaire" (en dessous de 3 T), à une branche "faible polarisation nucléaire" (au delà de 3 T). Sur la figure de gauche est représentée la modélisation en ne tenant pas compte de la dépendance de T_d avec le champ. Pour cette raison, l'accord avec l'expérience n'est correct que pour les champs forts.

Comme la bistabilité se manifeste quand le taux de flip-flop $\propto T_{1e}^{-1}$ est modulé par un paramètre

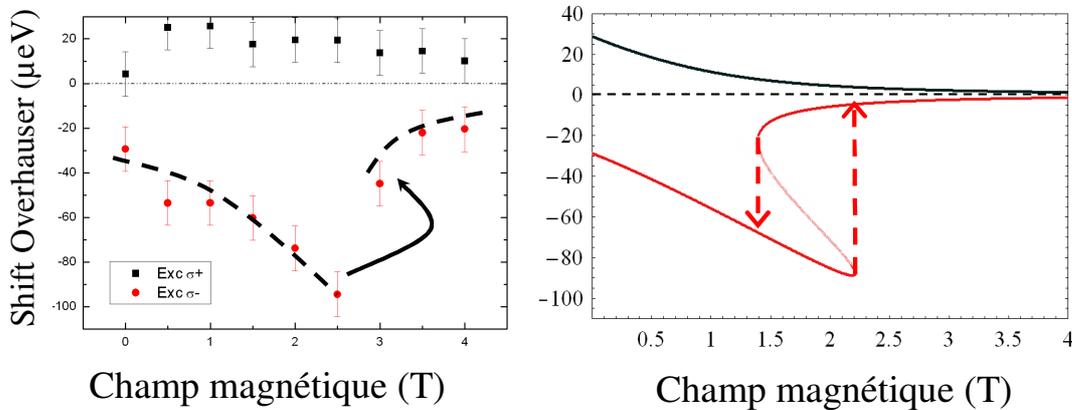


FIG. 5.25: A gauche : Evolution du shift Overhauser de X^+ en fonction du champ magnétique appliqué. A droite : modélisation en considérant un temps de dépolarisation T_d indépendant du champ.

extérieur, elle peut aussi être mise en évidence en faisant varier la puissance d'excitation qui détermine le facteur d'occupation f_e . La figure 5.26 montre cet effet observé par B. Urbaszek *et al.*. Récemment, A.I Tartakovskii *et al.* ont mis en évidence ces mêmes effets bistables en fonction de la puissance d'excitation et du champ appliqué, non pas sur un exciton chargé mais sur un exciton neutre pour des champs magnétiques comparables. Ils ont cependant excité optiquement leur échantillon dans la couche de mouillage, ce qui pourrait compromettre la compréhension fine de leurs résultats. En tout état de cause, la question reste ouverte de comprendre les mécanismes de polarisation dynamique des noyaux à partir d'exciton neutres ²⁶. Mentionnons pour finir que P. Maletinsky *et al.* ont aussi très récemment [22] observé ces phénomènes de bistabilité en travaillant sur un trion négatif d'une boîte quantique InAs. Leurs mesures très peu bruitées montrent un accord somme toute excellent avec le modèle développé dans ce présent chapitre, à

²⁶Dans un fort champ magnétique on résout le problème de l'anisotropie d'échange vis à vis des règles de sélection optique, mais pas celui du fort splitting d'échange entre états noirs et brillants qui doit considérablement diminuer la probabilité de flip-flop.

condition d'inclure la variation de T_d avec le champ magnétique externe.

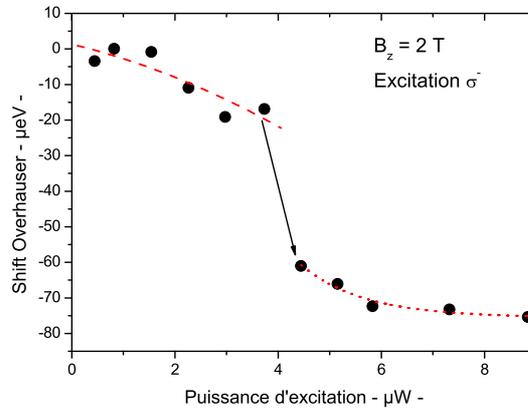


FIG. 5.26: Evolution du shift Overhauser de X^+ en fonction de la puissance d'excitation

5.5 Bilan

Dans ce chapitre, nous avons mis en évidence la polarisation dynamique des spins nucléaires d'une boîte quantique unique. Nos résultats montrent le changement de sens du champ Overhauser, suivant l'état de charge de la boîte quantique. Ce fait marquant souligne le bon contrôle que l'on a de l'injection optique dans les boîtes de porteurs (électron ou trou) ayant un spin bien déterminé. Cette situation diffère notablement de celle des boîtes GaAs de fluctuation d'interface[7]. Par ailleurs, nous avons mis en lumière les non-linéarités du mécanisme de polarisation dynamique des noyaux : dans le régime des faibles champs magnétiques, le système nucléaire présente une unique branche solution de l'équation d'évolution, laquelle reflète une réponse non-linéaire. À plus fort champ magnétique, cette non-linéarité donne lieu à un comportement bistable. Remarquablement, dans les deux situations, notre modèle théorique reproduit très bien les résultats expérimentaux. Notons que celui-ci ne fait qu'adapter au cas des boîtes quantiques une description de la polarisation dynamique des noyaux éprouvée de longue date, en incorporant toutefois quelques nouveautés. En particulier, la prise en compte du champ nucléaire lui-même dans le splitting de spin des électrons donne lieu à une rétroaction responsable des non-linéarités observées. Le contrôle du shift Overhauser par la polarisation circulaire, pour un champ magnétique de 0.2 T et 2 T en est une assez bonne illustration. En corollaire, l'accord globalement bon avec le modèle proposé confirme que la mesure de la polarisation circulaire dans les conditions d'excitation intra-boîte, contient bien toute l'"information" sur l'histoire du spin électronique confiné dans la boîte quantique. Il reste quelques questions ouvertes comme l'origine physique de la dépolarisation des noyaux. Dans le chapitre suivant, nous allons nous intéresser aux conséquences de cette interaction hy-

perfine avec les noyaux, vis à vis de la relaxation de spin des électrons dans les boîtes quantiques.

Bibliographie

- [1] A. A. Toropov, E. L. Ivchenko, O. Krebs, S. Cortez, P. Voisin, and J. L. Gentner. Excitonic contributions to the quantum-confined pockels effect. *Phys. Rev. B*, 63 :35302, 2000.
- [2] A. V. Koudinov, A. Akimov, Yu. G. Kusrayev, and F. Henneberger. Optical and magnetic anisotropies of the hole states in stranski-krastanov quantum dots. *Phys. Rev. B*, 70 :241305(R), 2004.
- [3] I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Couteau, J. P. Poizat, and J. M. Gérard. Fast exciton spin relaxation in single quantum dots. *Phys. Rev. B*, 71 :233304, 2005.
- [4] J.J Finley, D.J Mowbray, M.S Skolnick, A.D Ashmore, C. Barker, and A.F.G Monte. Fine structure of charged and neutral excitons in InAs/Al_{0.6}Ga_{0.4}As quantum dots. *Physical review B*, 66(153316), 2002.
- [5] N. I. Cade, H. Gotoh, H. Kamada, and H. Nakano. Fine structure and magneto-optics of exciton, trion, and charged biexciton states in single InAs quantum dots emitting at 1.3 μ m. *Physical Review B*, 73(115322), 2006.
- [6] M Bayer, G Ortner, O Stern, A Kuther, A. A Gorbunov, and A Forchel. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 65(195315), 2002.
- [7] A.S Bracker, E.A Stinaff, D. Gammon, M.E Ware, J.G Tischler, A. Shabaev, Al. L Efros, D. Park, D. Gershoni, V.L Korenev, and I.A Merkulov. Opticla pumping of electronic and nuclear spin in single charge-tunnable quantum dots. *Physical Review Letter*, 94(0474002), 2005.
- [8] S.W Brown, T.A Kenndy, D. Gammon, and E.S Snow. Spectrally resolved overhauser shifts in single GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum dots. *Physical Review B*, 54(24), 1996.
- [9] D. Gammon, Al Efros, T.A Kennedy, M. Rosen, D.S Katzer, and D. Park. Electron and nuclear spin interactions in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 86(22), 2001.
- [10] C.W Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu. Knight-filed-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots. *Physical Review Letters*, 96(167403), 2006.
- [11] A. Abragam. *Principles of Nuclear Magnetism*. Oxford science publications, 1961.

- [12] Claude Cohen-Tannoudji and Jacques Dupont-Roc et Gilbert Grynberg. *Processus D'interaction Entre Photons et Atomes*. CNRS éditions, 2001.
- [13] C. Deng and X. Hu. Selective dynamic nuclear spin polarization in a spin-blocked double dot. *Physical Review B*, 71(033307), 2005.
- [14] F. Meier and B. Zakharchenya, editors. *Optical Orientation*, volume 8. North-Holland, 1984.
- [15] D. Gammon, S. Brown, E.S Snow, T.A Kennedy, D.S Katzer, and D. Park. Nuclear spectroscopy in single quantum dots : Nanoscopic raman scattering and nuclear magnetic resonance. *Science*, 277(5322) :85–88, 1997.
- [16] R. Oulton, A. Greilich, S. Yu Verbin, R.V Cherbunin, T. Auer, D.R Yakovlev, M. Bayer, V. Starache, D. Reuter, and A. Wieck. Millisecond spin lifetimes in quantum dots at zero applied magnetic field due to strong electron-nuclear interaction. *arXiv : cond-mat/0505446 v3*, 2006.
- [17] B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, K. Kowalik, A. Kudelski, P. Voisin, B. Urbaszek, X. Marie, and T. Amand. Dynamic nuclear polarization of a single charge-tunable InAs/GaAs quantum dot. *Physical Review B*, 74(081306), 2006.
- [18] S. Laurent, B. Eble, O. Krebs, A. Lemaitre, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin. Electrical control of hole spin relaxation in charge tunable InAs/GaAs quantum dots. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 94(147401), 2005.
- [19] J.M Smith, P.A. Dalgarno, R.J. Warburton, A.O. Govorov, K. Karrai, B.D. Gerardot, and P.M Petroff. Voltage control of the spin dynamics of an exciton in a semiconductor quantum dot. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 94(197402), 2005.
- [20] M. Eikhoff et al. Mapping of strain and electric field in GaAs/AlGaAs quantum wells samples by laser assisted-nmr. *Physical Review B*, 67(085308), 2003.
- [21] P.F. Braun, B. Urbaszek, T. Amand, X. Marie, O. Krebs, B. Eble, A. Lemaître, and P. Voisin. Bistability of the nuclear polarization in InGaAs QDs. *arXiv : cond-mat/0607728 v2*, 2006.
- [22] P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu. Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins, 2006.

Chapitre 6

Relaxation du spin électronique induite par l'interaction hyperfine

Sommaire

6.1 Mécanisme de Merkulov	138
6.1.1 Influence des fluctuations du champ Overhauser	138
6.1.2 Relaxation partielle d'un ensemble de spins électroniques	140
6.1.3 Relaxation du spin électronique en présence d'un champ magnétique extérieur	141
6.2 Mise en évidence de la relaxation de Merkulov sur ensemble de boîtes dopées p	142
6.3 Mise en évidence du mécanisme de relaxation de Merkulov sur une boîte quantique unique	145
6.3.1 Polarisation circulaire de X^+ en excitation impulsionnelle	145
6.3.2 Effets sur le X^+ en excitation continue sans champ magnétique	147
6.3.3 Modulation rapide de la polarisation circulaire de l'excitation	149
6.4 Polarisation des noyaux en absence de champ magnétique extérieur	153
6.4.1 Dépendance du temps de dépolarisation nucléaire T_d dans le régime des faibles champs magnétiques	154
6.4.2 Evaluation du champ Knight	156
6.4.3 Polarisation dynamique des spins nucléaires observée sur ensemble de boîtes	159
6.5 Bilan	163

Dans le chapitre 4, nous avons introduit les notions essentielles relatives à l'interaction hyperfine dans les semiconducteurs. Nous avons alors vu que le terme $I_z S_z^e$ de l'hamiltonien hyperfin correspondant à l'interaction statique, est à l'origine du "champ nucléaire" agissant sur l'électron lorsque l'on effectue la moyenne $\langle I_z \rangle$ sur les noyaux, ou du "champ électronique"

agissant sur le noyau lorsque l'on moyenne sur l'électron¹. Ensuite, au chapitre 5 nous avons mis en évidence le pompage optique des spins nucléaires d'une boîte quantique en présence d'un champ magnétique extérieur.

Au cours de ce chapitre, nous verrons qu'il est possible d'observer la polarisation dynamique des spins nucléaires en l'absence de champ magnétique appliqué, ce qui nous amènera à aborder modestement la question du refroidissement du système nucléaire dans le domaine des petits champs magnétiques. Ceci constituera la seconde partie de ce chapitre.

Dans la première partie, un autre aspect de l'interaction hyperfine sera détaillé : nous montrerons que les fluctuations statistiques de l'environnement nucléaire participent à un mécanisme de relaxation partielle du spin électronique. En effet les termes flip-flop $\sum_j (I_j^+ S_e^- + I_j^- S_e^+)$ induisent des transitions avec retournement de spin entre les états électroniques et nucléaire ; dans la situation où $\langle I_z \rangle \neq 0$, les événements flip-flop, qui ont construit la polarisation nucléaire, maintiennent sa valeur en régime stationnaire. Nous verrons ici que dans la situation $\langle I_z \rangle = 0$, les mêmes événements flip-flop sont fondamentalement à l'origine du mécanisme de relaxation de Merkulov. Le système à deux niveaux que constitue le spin de l'électron n'est alors plus suffisamment isolé du bain nucléaire pour réaliser un Q-bit fiable [1, 2]. Nous montrerons alors qu'un champ magnétique aussi faible que 100 mT, restaure l'intégrité du système à deux niveaux.

6.1 Mécanisme de Merkulov

6.1.1 Influence des fluctuations du champ Overhauser

L'idée de départ est de considérer les fluctuations nucléaires comme un champ magnétique effectif agissant sur le spin électronique. La précession de ce dernier autour de la composante transverse du champ va conduire à une relaxation partielle. Nous allons commencer par évaluer l'intensité de ce champ aléatoire en calculant sa variance $\sigma^2(\vec{B}_n) = \langle \vec{B}_n^2 \rangle - \langle \vec{B}_n \rangle^2$, où pour rappel les composantes ($\nu = x, y, z$) du champ hyperfin sont :

$$\vec{B}_{n\nu} = \frac{v_0}{g_e \mu_B} \sum_j A^j |\psi(\vec{r}_j)|^2 \hat{I}_\nu^j$$

La somme porte sur les noyaux j d'une boîte quantique de N Noyaux. Cette expression se simplifie en $\frac{2}{g_e \mu_B N} \sum_j A^j \hat{I}_\nu^j$ dans l'hypothèse où $\psi = \sqrt{\frac{2}{N v_0}}$. On obtient alors :

$$\sigma^2(\vec{B}_n) = \left(\frac{2}{g_e \mu_B N} \right)^2 \left[\langle \sum_\nu \left(\sum_j A^j \hat{I}_\nu^j \right)^2 \rangle - \sum_\nu \left(\langle \sum_j A^j \hat{I}_\nu^j \rangle \right)^2 \right] \quad (6.1)$$

Ici nous considérons les fluctuations associées aux variables aléatoires que sont les spins nucléaires pour une boîte unique. Pour étendre le calcul au cas d'un ensemble de boîtes, il faudrait

¹Nous avons vu que les processus de moyennage sur les noyaux et l'électron étaient de natures différentes au chapitre 4

inclure une dispersion sur le nombre de noyaux N , ainsi qu'éventuellement sur le facteur de Landé g_e et la composition des boîtes. Notons que notre approche revient aussi à considérer une moyenne d'ensemble sur un grand nombre de boîtes quantiques qui seraient homogènes en composition et en taille. Elle sera applicable à nos mesures sur boîte unique à condition que le temps d'intégration expérimental soit suffisamment long, par rapport au temps de corrélation de ce champ nucléaire. A ce stade, on va supposer que la polarisation des noyaux est essentiellement nulle (pas de polarisation optique des noyaux ni de fort champ magnétique), i.e. $\langle \hat{I}_\nu^j \rangle = 0$ et que les corrélations entre spins de noyaux voisins sont également nulles, c'est à dire $\langle \hat{I}_\nu^j \hat{I}_\nu^k \rangle = 0$. On obtient alors :

$$\sigma^2(\vec{B}_n) = \left(\frac{2}{g_e \mu_B N} \right)^2 \sum_\nu \left[\sum_j A^{j^2} \langle I^{j^2} \rangle + 2 \underbrace{\sum_{j < k} A^j A^k \langle \hat{I}_\nu^j \hat{I}_\nu^k \rangle}_{=0} \right] \quad (6.2)$$

En utilisant la relation $\vec{I}^{j^2} = I^j(I^j + 1)$ et en supposant que $A^j \simeq A$ pour les noyaux j des boîtes InGaAs, on obtient l'expression suivante pour la variance du champ nucléaire :

$$\sigma^2(\vec{B}_n) = \left(\frac{2A}{g_e \mu_B \sqrt{N}} \right)^2 \sum_\alpha x_\alpha I^\alpha (I^\alpha + 1) \quad (6.3)$$

La composition isotopique x_α , où $\alpha = {}^{115}\text{In}$, ${}^{69}\text{Ga}$, ${}^{71}\text{Ga}$, ${}^{75}\text{As}$ est telle que $\sum_\alpha x_\alpha = 1$.

Application numérique : Considérons une boîte InGaAs de $5 \cdot 10^4$ noyaux avec $A = 50 \mu\text{eV}$. Dans ce cas l'énergie typique de l'interaction hyperfine d'un électron est donnée $g_e \mu_B \sigma(\vec{B}_n) = \frac{2A}{\sqrt{N}} \sqrt{\sum_\alpha x_\alpha I^\alpha (I^\alpha + 1)} \simeq 2 \mu\text{eV}$. Le champ magnétique aléatoire peut alors être caractérisé par une valeur moyenne nulle et une moyenne quadratique $\Delta_B = \frac{2}{3} \sigma(\vec{B}_n)$ qui vaut environ quelques dizaines de mT. Ainsi, Le spin électronique précesse dans ce champ avec une période T_Δ de $h/\sigma(\vec{B}_n) \sim 1 \text{ ns}$.

L'estimation de ce temps de précession est précieux. En effet, on peut le comparer notamment à différents temps typiques :

- ◇ Le temps de précession du spin du noyau dans le champ Knight de l'électron. Nous l'avons estimé au chapitre 4 à environ $1 \mu\text{s}$
- ◇ Le temps de précession du spin nucléaire dans le champ local dipolaire qui est environ $100 \mu\text{s}$ que l'on peut associer au temps de corrélation des fluctuations de \vec{B}_n .

Comme ces temps sont beaucoup plus longs que la période de précession dans le champ aléatoire, on peut considérer que l'électron photocréé évolue dans un champ nucléaire statique durant sa durée de vie dans la boîte. Dans notre cas, ce dernier est généralement limité par la recombinaison radiative avec un trou (alors de l'ordre la nanoseconde) ou par la recapture d'un électron ou d'une nouvelle paire électron-trou (alors de quelques dizaines de ps à quelques μs).

6.1.2 Relaxation partielle d'un ensemble de spins électroniques

L'argument précédent est en réalité le point majeur de l'article de I. A. Merkulov *et al.* [3]. En effet cette hypothèse permet de calculer analytiquement la dynamique de relaxation de l'électron. Le champ aléatoire peut être caractérisé par une densité de probabilité Gaussienne $P(\vec{B}_n)$, avec une dispersion correspondante à Δ_B :

$$P(\vec{B}_n) = \frac{1}{\pi^{3/2} \Delta_B^3} \exp \left[-\frac{(\vec{B}_n)^2}{\Delta_B^2} \right] \quad (6.4)$$

L'équation du mouvement de précession dans un champ magnétique *statique* est donnée par :

$$\vec{S}(t) = (\vec{S}_0 \cdot \vec{n})\vec{n} + \{ \vec{S}_0 - (\vec{S}_0 \cdot \vec{n})\vec{n} \} \cos \omega t + \{ [\vec{S}_0 - (\vec{S}_0 \cdot \vec{n})\vec{n}] \times \vec{n} \} \sin \omega t \quad (6.5)$$

où \vec{S}_0 est le spin initial, $\vec{n} = \vec{B}_n/B_n$ et $\omega = g_e \mu_B B_n / \hbar$.

les auteurs de ce papier ont ainsi calculé l'évolution temporelle de la moyenne d'ensemble du spin électronique $\langle S(t) \rangle$, en moyennant l'équation 6.5 sur la distribution $P(\vec{B}_n)$. Ils obtiennent ainsi la dynamique de la relaxation d'un ensemble de spin électronique :

$$\langle \vec{S}(t) \rangle = \frac{\vec{S}_0}{3} \left\{ 1 + 2 \left[1 - 2 \left(\frac{t}{2T_\Delta} \right)^2 \right] \exp \left[- \left(\frac{t}{2T_\Delta} \right)^2 \right] \right\} \quad (6.6)$$

L'équation 6.6 décrit l'évolution du spin moyen d'un ensemble de boîtes identiques, pour des temps courts devant la période de précession du noyau dans le champ hyperfin de l'électron (environ 1 μ s).

Chaque spin précesse de manière cohérente autour du champ magnétique \vec{B}_n , comme le décrit l'équation 6.5. Néanmoins, celui-ci étant distribué aléatoirement en norme et en direction dans chaque boîte, chaque spin \vec{S}^i va précesser autour d'une direction et avec une fréquence différente. En conséquence la moyenne $\langle \vec{S} \rangle$ d'un ensemble d'électrons créés à l'instant $t=0$ avec tous le même spin \vec{S}_0 diminue comme le montre la figure 6.1. Le temps caractéristique de l'évolution $T_\Delta = \hbar/g_e \mu_B \Delta_B$, représente le temps moyen de ce déphasage.

Par ailleurs, il est remarquable que le spin moyen relaxe au tiers de sa valeur initiale. Ceci rend compte que toutes les orientations du champ B_n sont équiprobables ; on peut l'expliquer de manière simple. Pour 2/3 des boîtes, le champ \vec{B}_n est essentiellement transverse à \vec{S}_0 . Pour ce sous-ensemble $\langle S \rangle$ tends vers 0 assez rapidement en raison du brouillage des fréquences de précession. A l'inverse, pour le 1/3 restant \vec{B}_n est plutôt colinéaire à \vec{S}_0 , donc $\langle \vec{S} \rangle \simeq \vec{S}_0$. Quand on fait la moyenne sur ces deux sous-ensembles, on trouve bien que $\langle S \rangle$ tend vers $\langle S_0 \rangle / 3$. Il faut bien réaliser que cette dynamique très particulière décrit un processus de déphasage d'un système de spins qui ont tous individuellement une évolution cohérente. Pour cette raison, quand 2/3 des spins ont effectué en moyenne une demi-précession autour d'un champ principalement transverse, on observe une très faible polarisation qui change presque de signe avant de remonter à 1/3. Contrairement à une décroissance exponentielle, la dynamique qui en résulte n'est donc pas auto-similaire et donc n'est pas adaptée à décrire n'importe quelle configuration initiale de polarisation de spin.

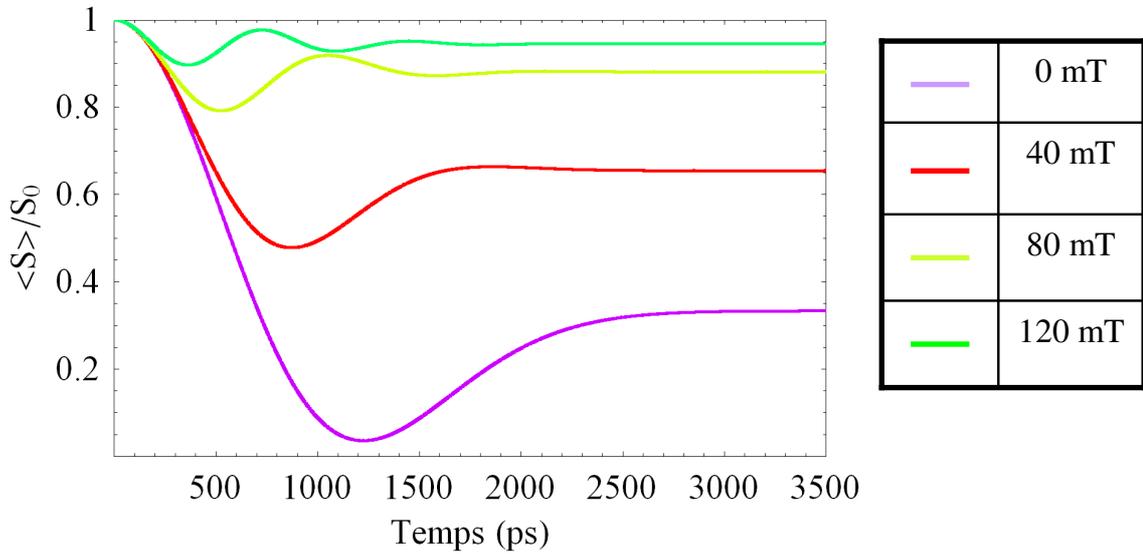


FIG. 6.1: Représentation de l'évolution du spin $\langle S(t) \rangle / \langle S_0 \rangle$ pour différentes valeurs du champ magnétique longitudinal.

6.1.3 Relaxation du spin électronique en présence d'un champ magnétique extérieur

Naturellement, un champ magnétique \vec{B} va écranter les fluctuations du champ effectif autour duquel le spin de l'électron précesse et induites par B_n . Attendue la faible valeur de Δ_B , de l'ordre d'une trentaine de mT, un champ magnétique extérieur d'une centaine de mT doit être suffisant. En présence d'un tel champ, la précession du spin électronique est toujours décrite par l'équation 6.5, avec $\vec{n} = (\vec{B} + \vec{B}_n) / \|\vec{B} + \vec{B}_n\|$ et $\omega = g_e \mu_B \|\vec{B} + \vec{B}_n\| / \hbar$.

I. A. Merkulov *et al.* ont calculé l'évolution temporelle du spin moyen $\langle \vec{S} \rangle$ dans le champ magnétique extérieur perturbé par les fluctuations du champ nucléaire. Pour simplifier, nous considérons ici que le spin à $t = 0$ ainsi que le champ magnétique sont parallèles, orientés suivant z . Le résultat de ce calcul ne conduit pas à une expression analytique simple² :

$$\frac{\langle S(t) \rangle_\beta}{\langle S_0 \rangle} = 1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dz dy \frac{y e^{-z^2-y}}{(\beta+z)^2+y} + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dz dy \frac{y e^{-z^2-y}}{(\beta+z)^2+y} \cos\left(\frac{t}{T_\Delta} \sqrt{(\beta+z)^2+y}\right) \quad (6.7)$$

$$\text{où } \beta = B/\Delta_B$$

Sur la figure 6.1 nous avons tracé l'évolution du spin moyen pour différentes valeurs du champ magnétique extérieur obtenue par intégration numérique de ces équations. L'écart type des

²Il est intéressant de noter que A. Khaetskii *et al.* arrivent aux mêmes résultats, en utilisant un formalisme assez différent [4, 5].

fluctuations de champ nucléaire est $\Delta_B = 28 \text{ mT}$ correspondant à $T_\Delta = 500 \text{ ps}$. L'évolution de la cinétique de $\langle S \rangle(t)$ avec le champ appliqué constitue une signature probante permettant de mettre en évidence le mécanisme de relaxation.

Au chapitre 3 nous avons vu que la dynamique de polarisation des trions positifs présentait un profil temporel comparable au calcul fait ici à champ nul, avec un déclin assez rapide (en 450 ps) suivi d'un plateau. Dans la section suivante, nous allons discuter des expériences résolues en temps sur ensemble de boîtes dopées p, qui ont permis de montrer plus clairement encore le comportement prédit par ce modèle pour $\langle S \rangle(t)$ en fonction du champ magnétique.

6.2 Mise en évidence de la relaxation de Merkulov sur ensemble de boîtes dopées p

Nous allons dans cette section, commenter les résultats de P.-F. Braun [6] obtenus en 2005 sur un ensemble de boîtes InAs. L'échantillon qui a été étudié est constitué de dix plans de boîtes, séparés les uns des autres par 30 nm de GaAs, et entre lesquels se trouve une couche dopée au Be, assurant un dopage de type p avec a priori, un trou par boîte. Sur cet échantillon, ils ont mesuré la dynamique de la polarisation circulaire de la luminescence, en fonction du champ magnétique appliqué.

La figure 6.2 montre la dynamique de la polarisation circulaire ($P_c(t) = -2\langle S(t) \rangle$) sans champ magnétique extérieur. L'énergie d'excitation est à 1.44 eV, au niveau de la couche de mouillage, et la puissance d'excitation est faible ($\sim 1 \text{ mW}$ focalisé sur $\sim 50 \mu\text{m}$). On voit clairement deux régimes : un déclin de la polarisation circulaire sur environ 700 ps suivi d'un plateau stable sur la durée accessible à la mesure. De plus, on constate que la polarisation circulaire aux temps longs (12 %) est égale au tiers de la polarisation initiale ($\sim 40 \%$) en accord avec les prédictions du modèle de déphasage décrit au-dessus.

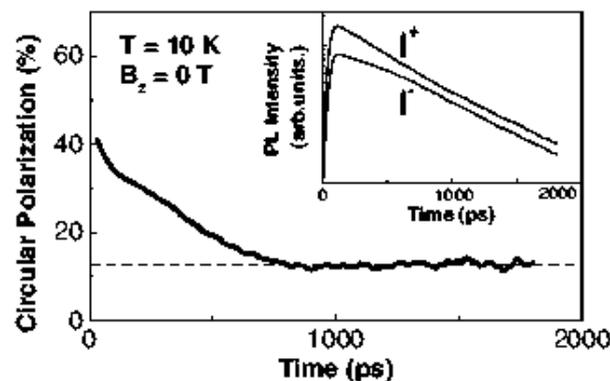


FIG. 6.2: Suivi temporel de la polarisation circulaire de la photoluminescence d'un ensemble de boîtes InAs dopées p à champ magnétique nul. D'après [6]

Par ailleurs, un second argument permettant d'attribuer à l'interaction hyperfine le déclin de la polarisation initiale est apporté par l'évolution de la dynamique dans un champ magnétique extérieur (voir la figure 6.3). Ce dernier, a pour effet de supprimer la relaxation de la polarisation circulaire aux temps courts (< 700 ps), et ce dès 100 mT. Le déclin observé peut donc bien être attribué à un champ effectif de quelques dizaines de mT seulement, plutôt qu'à un champ beaucoup plus fort qui produirait une relaxation à l'échelle de la nanoseconde dans le régime de "rétrécissement par le mouvement"³. L'évolution de $P_c(t)$ est inchangée avec un champ de 400 mT⁴. Les résultats 6.3 sont bien sûr très réminiscents de ce qui est attendu théoriquement (*c.f.* figure 6.1) et permettent d'invoquer le rôle majeur de l'interaction hyperfine sur le processus de relaxation du spin électronique.

Estimation de T_Δ : La dynamique de la polarisation circulaire à champ nul diffère quand même de la théorie 6.1 ; en effet, on ne voit pas le minimum local de la polarisation, vers $2T_\Delta$. Ceci peut être attribué à l'inhomogénéité sur le nombre d'atomes et sur la composition des boîtes observées, induisant une dispersion sur T_Δ . La prise en compte de la dispersion sur le nombre d'atomes, a permis d'évaluer T_Δ à 470 ± 170 ps, en bon accord avec ce qui est attendu.

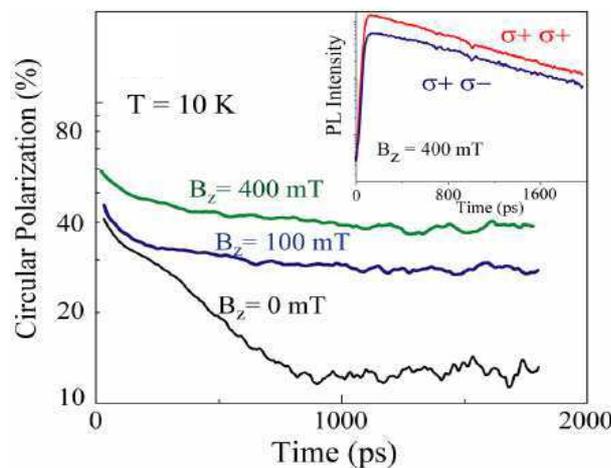


FIG. 6.3: Suivi temporel de la polarisation circulaire de la photoluminescence d'un ensemble de boîtes InAs dopées p pour différents champs appliqués. D'après [6]

On peut se demander si d'autres effets inhomogènes, inhérents à l'étude d'un ensemble de boîtes, peuvent altérer ces conclusions ? Les effets de la puissance d'excitation sont certainement

³Régime qui correspond au cas où $\omega_s \tau_c \ll 1$ dans le formalisme dérivé au chapitre 5 et conduisant à un taux de relaxation du spin (électron ou noyau) de la forme $T_1^{-1} \propto \Omega^2 \tau_c$ où Ω est la pulsation de Larmor dans le champ magnétique effectif responsable de la relaxation.

⁴La différence de polarisation circulaire initiale est due aux suppressions partielles de la relaxation du spin de l'électron avant thermalisation du trion sur le fondamental.

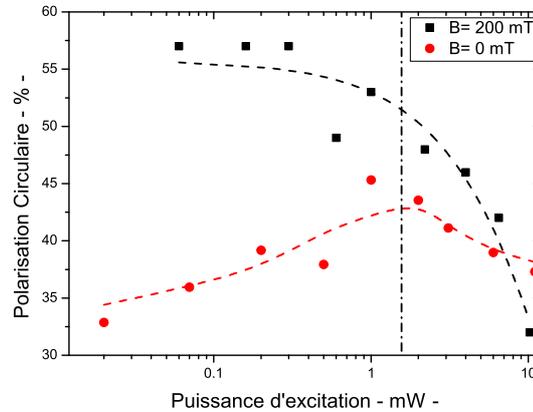


FIG. 6.4: Evolution de la polarisation circulaire en fonction de la puissance d'excitation. L'excitation est polarisée circulairement. L'énergie de détection est 1.29 eV et d'excitation à 1.42 eV.

à prendre en considération sur ensemble de boîtes. Dans ce but, nous avons étudié un échantillon de boîtes quantiques avec delta-dopage de type p entre les plans de boîtes, donc tout à fait similaire à celui utilisé par P.-F. Braun *et al.*. La polarisation circulaire mesurée en excitation dans la couche de mouillage est reportée sur la figure 6.4. Elle présente en fonction de la puissance deux régimes : à faible puissance, on injecte en moyenne moins d'une paire électron/trou dans la boîte ; la luminescence est majoritairement celle de la recombinaison de X^+ , la polarisation circulaire est élevée. Au delà de ~ 1 mW elle chute, probablement en raison de l'injection de porteurs supplémentaires formant des complexes excitoniques X^{2+} , $2X^+$, etc... Ceux-ci participent au déclin de la polarisation circulaire, sur un temps de quelques ps⁵.

Un autre point évident à considérer est celui de la possible polarisation dynamique des noyaux sous excitation optique continue comme on l'a mis en évidence au chapitre précédent. La composante statique du champ Overhauser serait susceptible de participer à la suppression du déclin de la polarisation circulaire, au même titre que le champ magnétique appliqué. P.-F. Braun *et al.* n'observent pas de changement de la dynamique en changeant l'hélicité de l'excitation par rapport au sens du champ magnétique de 100 mT. Ceci semble indiquer l'absence d'une forte polarisation nucléaire dans le régime particulier d'excitation impulsionnelle utilisée pour les mesures résolues en temps. Par l'étude de boîtes quantiques uniques, nous allons voir qu'effectivement ces deux aspects de l'interaction hyperfine (déphasage et polarisation dynamique) interfèrent l'un avec l'autre.

⁵En raison de l'interaction d'échange anisotrope $\delta_1^{S-P} \sim 100 \mu eV$

6.3 Mise en évidence du mécanisme de relaxation de Merkulov sur une boîte quantique unique

Les formules établies par I. A. Merkulov *et al.* pour un ensemble de boîtes quantiques restent valides pour une boîte unique, à condition que le temps d'observation soit grand devant $T_2 \sim 100 \mu\text{s}$, afin que le champ nucléaire fluctuant puisse explorer toutes les configurations accessibles.

Dans un premier temps, nous allons étudier la polarisation circulaire des raies de luminescence X^+ , sous excitation impulsionnelle ⁶, afin de se trouver dans les mêmes conditions d'excitation que dans les expériences résolues en temps.

6.3.1 Polarisation circulaire de X^+ en excitation impulsionnelle

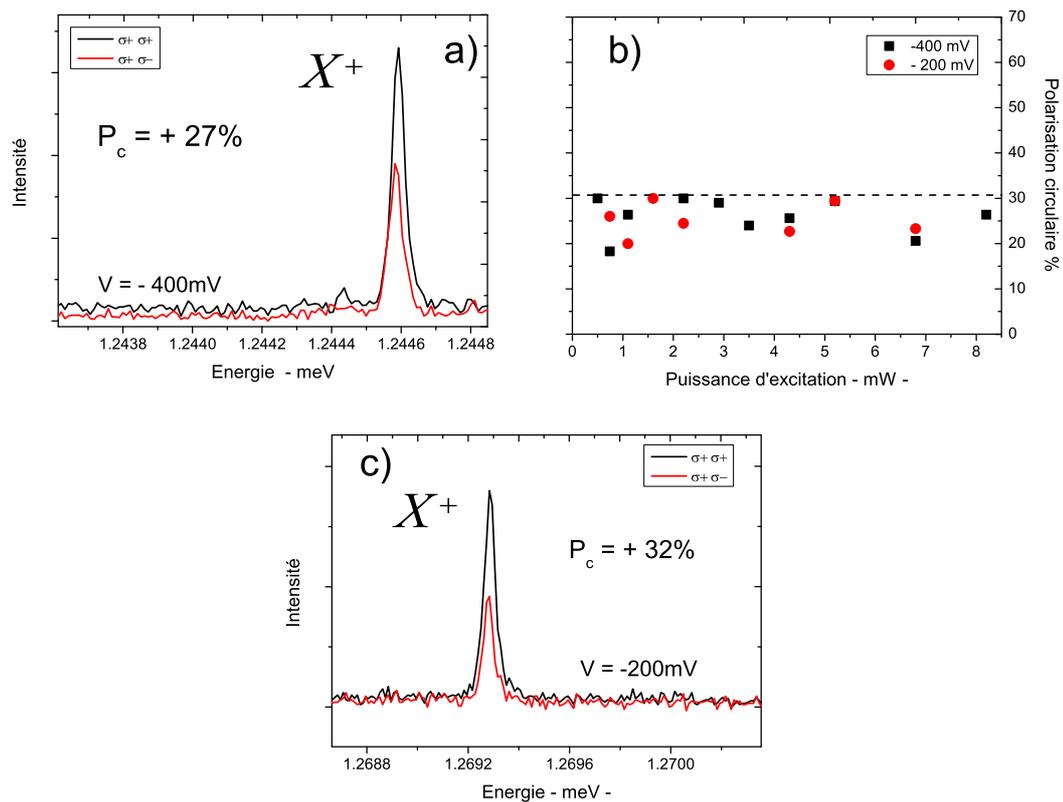


FIG. 6.5: a) Raie X^+ . Excitation à 1.42 eV. b) Polarisation circulaire de X^+ en fonction de la puissance d'excitation, pour deux tensions différentes. L'énergie d'excitation est toujours à 1.42 eV. c) Excitation intra-boîte à 1.32 eV. puissance 2 mW

⁶L'excitation était continue au chapitre précédent

Les expériences ont été réalisées avec l'échantillon n-i-Schottky sans champ magnétique appliqué et excité par un Ti :Saphir délivrant des impulsions ps toutes les 12 ns. Dans ce régime, nous avons constaté que la polarisation circulaire des trions X^+ est systématiquement de l'ordre de 30%, et ceci de manière peu dépendante des autres conditions d'excitation (énergie ou puissance). La figure 6.5 montre un exemple où la polarisation circulaire de X^+ possède globalement la même valeur en excitation intra-boîte et dans la couche de mouillage. Avec cette dernière condition d'excitation, $P_c(X^+)$ est indépendante de la puissance d'excitation et de la tension de grille. Il en est de même en excitant à ~ 80 meV au dessus du fondamental de la boîte. On pourrait attendre que les paramètres, tels que l'énergie d'excitation, la puissance, ou la tension modifie le mécanisme de formation de X^+ : par exemple, si le trou additionnel vient former X^+ quand la boîte confine déjà la paire électron/trou, le terme d'échange agissant avant la thermalisation du trion pourrait expliquer la polarisation circulaire relativement faible. En pratique, la robustesse de la polarisation circulaire à $\sim 30\%$ demeure. On peut comparer ce résultat, à celui observé pour l'échantillon p-i-Schottky où la charge positive est a priori injectée électriquement dans la boîte. Nous constatons, de manière statistique, que dans le régime de tension où le trion positif luminesce le plus, la polarisation circulaire est un peu plus forte, de l'ordre de 45%. La figure 6.6 montre par exemple deux trions positifs ayant cette valeur de polarisation.

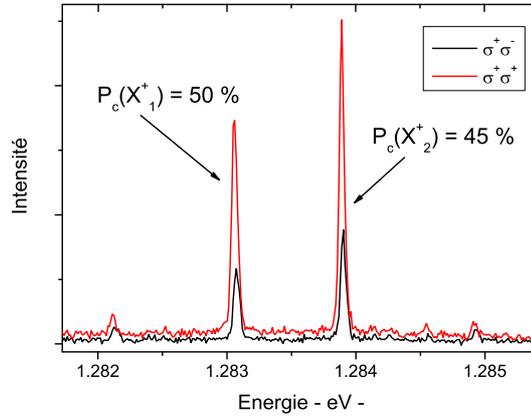


FIG. 6.6: Echantillon p-i-Schottky. Deux raies X^+ . Energie d'excitation intra-boîte à 1.36 eV, puissance 1.1 mW

En considérant que le mécanisme décrit par I.A. Merkulov n'agit que pendant le temps de vie du trion, la polarisation circulaire attendue est donnée par :

$$P_c = 2 \int_0^{+\infty} \langle S(t) \rangle \frac{\exp(-t/\tau_r)}{\tau_r} dt \quad (6.8)$$

La valeur maximale pour P_c est obtenue quand le spin initial $\langle S_0 \rangle = 1/2$. En prenant $\tau_r = 800$ ps et $T_\Delta = 500$ ps, on trouve $P_c^{max} \sim 53\%$. Les valeurs de polarisation circulaire obtenues en

excitation impulsionnelle sont donc tout à fait compatibles avec le mécanisme de déphasage dans le champ nucléaire.

Nous n'avons pas appliqué de champ magnétique en configuration d'excitation impulsionnelle, pour identifier une éventuelle présence de polarisation nucléaire. Les résultats qui vont suivre, où l'excitation est continue, vont apporter un nouvel éclairage.

6.3.2 Effets sur le X^+ en excitation continue sans champ magnétique

Nous avons réalisé, *en absence de champ magnétique*, l'expérience déjà faite au chapitre 5 : en tournant la lame $\lambda/4$ sur le chemin de l'excitation, on peut construire la dépendance d'un éventuel déplacement Overhauser en fonction de la polarisation circulaire. La figure 6.7 montre les résultats obtenus. La surprise a été de constater la présence d'un splitting dont le signe change bien avec le sens de la polarisation circulaire. Ceci constitue une signature indiscutable de l'existence d'une polarisation nucléaire sans champ appliqué ⁷ ! On constate en excitation σ^+ , un décalage Overhauser de l'ordre de $10 \mu eV$ soit un champ nucléaire de ~ 0.2 T sur l'électron correspondant à une polarisation nucléaire $P_n = B_n/B_n^{max}$ de 4%. Il en est de même en excitation σ^- .

Une autre différence apparaît maintenant en excitation continue : la polarisation circulaire de la luminescence est très forte $\sim 75\%$. Ce résultat contraste avec les 30% observés en excitation impulsionnelle au paragraphe précédent. Le champ Overhauser constaté est vraisemblablement à l'origine de cette forte polarisation puisqu'il doit inhiber ses propres fluctuations (en effet $B_n \gg \Delta_B$). Bien que leur effet soit apparemment supprimé pour la relaxation de spin des trions, ces fluctuations du champ nucléaires sont toujours présentes. On peut les estimer à l'aide de l'équation 6.1 : $\Delta_B^{\langle I_z \rangle \neq 0} = \Delta_B^{\langle I_z \rangle = 0} (1 - P_n^2)^{1/2}$; pour $P_n = 4\%$ on trouve que $\Delta_B^{\langle I_z \rangle \neq 0} = 0.99 \times \Delta_B^{\langle I_z \rangle = 0}$. Il faudrait atteindre des polarisations nucléaires très élevées de 50% pour commencer à supprimer de manière significative ces fluctuations.

La polarisation circulaire forte de X^+ , de l'ordre de 80% en champ magnétique nul, avait déjà été reportée dans l'équipe de M. Skolnick [7] mais sans que le rôle de l'interaction hyperfine n'ait été le moins du monde prise en compte dans l'interprétation. Pourtant, sur leurs mesures publiées, il semble qu'il est possible de distinguer un splitting de l'ordre de $8 \mu eV$.

Quelques mois après nos propres mesures, l'équipe d'A. Imamoglu à Zurich, a publié un article montrant l'existence de la polarisation dynamique des noyaux de boîtes quantiques InAs sans champ magnétique appliqué [8]. Dans cet article, les auteurs invoquent l'inhomogénéité du champ Knight pour expliquer ce phénomène somme toute assez surprenant ; nous en reparlerons plus en détail ultérieurement.

Il reste maintenant à comprendre comment l'excitation continue favorise la construction de la polarisation nucléaire. En régime impulsionnel où la fréquence de répétition du laser Ti :Saphir est de 82 MHz, l'électron est au mieux présent dans la boîte pendant $\tau_r \sim 1$ ns toutes les 12 ns.

⁷Il est certain que ces premières mesures étaient assez bruitées. Pendant cette expérience le niveau d'hélium dans le bidon était très faible, causant des vibrations mécaniques. les barres d'erreurs ont été évaluées en répétant trois fois la même mesure.

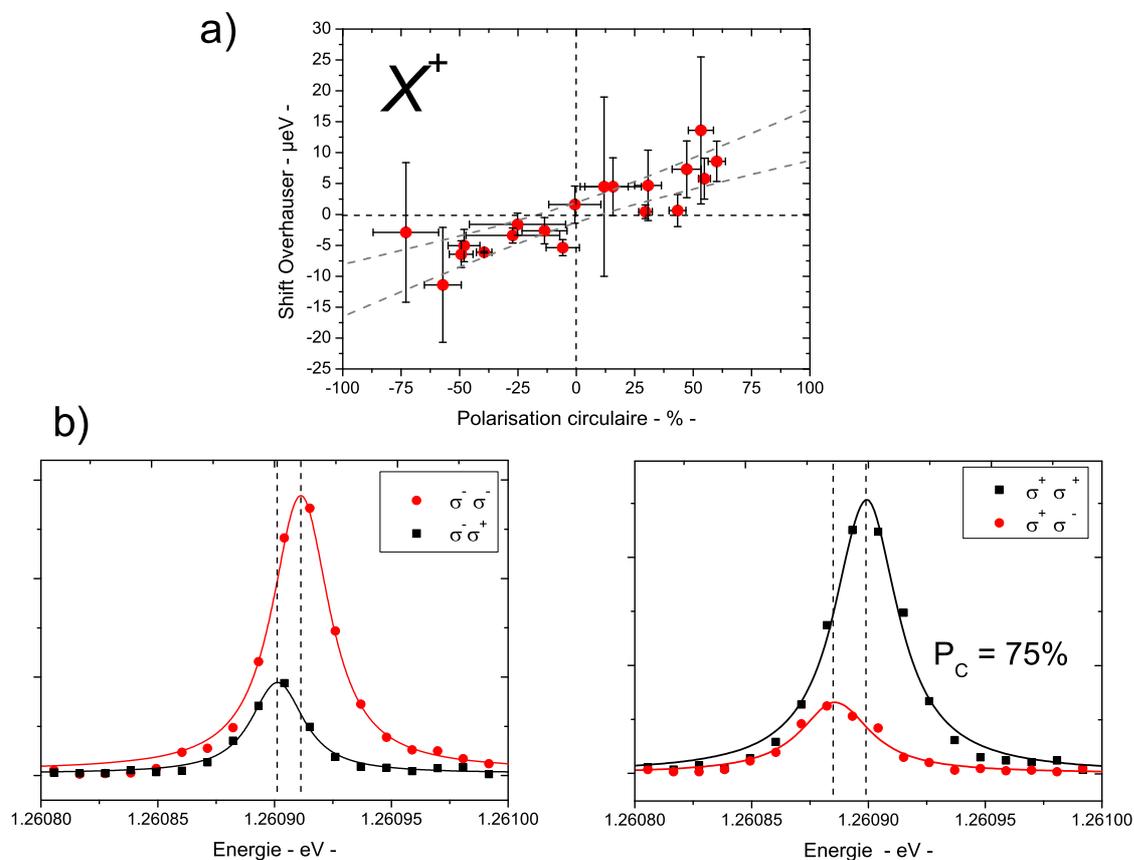


FIG. 6.7: En-haut :Évolution du shift Overhauser avec la polarisation circulaire de la luminescence. Au-dessous : raie de luminescence de X^+ en excitation σ^- puis σ^+ . Tension à -100 mV. Énergie d'excitation à 1.31 eV.

Autrement dit, l'électron est présent pendant moins de 10% du temps. Le facteur d'occupation temporelle f_e introduit au chapitre précédent est alors au mieux égal à 0.08 et dans la pratique certainement inférieur car on est généralement loin du régime de saturation. La constante de temps T_{1e} du mécanisme de polarisation dynamique des noyaux peut donc être significativement plus faible qu'en excitation continue⁸. Pour la même raison, le champ Knight moyen est aussi réduit. Or, il est fort probable qu'il contribue à l'établissement d'une polarisation nucléaire à champ nul [8] en masquant le champ local B_L ressenti par les noyaux. Cette dépendance double au facteur f_e explique donc certainement les différences observées entre les deux modes d'excitation.

Une conclusion importante peut être tirée de ces observations : si l'on veut mettre en évidence le mécanisme de Merkulov sur une boîte unique en excitation continue, il faut se placer dans des

⁸ A puissance moyenne d'excitation égale, on constate généralement une intensité de luminescence nettement plus forte en régime continu.

conditions expérimentales telles qu'il n'y ait pas de polarisation nucléaire.

6.3.3 Modulation rapide de la polarisation circulaire de l'excitation

Une méthode classique pour éliminer les effets de polarisation nucléaire, consiste à moduler la polarisation circulaire de l'excitation, afin que les spins nucléaire ne puissent suivre les variations rapides de $\langle S_z^e(t) \rangle$ [9]. À cette fin, nous avons inséré sur le chemin de l'excitation, un modulateur de polarisation photo-élastique à la place de la lame $\lambda/4$; ce dernier possède une fréquence de modulation fixe à 50 kHz.

Opérations de comptage :

Dans ces conditions, il faut utiliser un détecteur rapide : une diode à avalanche reliée à un compteur de photons SR400 permet de suivre temporellement l'intensité du laser (la détection est maintenant mono-canal). La figure 6.8 montre l'intensité du laser analysée en polarisation circulaire, en intégrant le comptage par tranches temporelles de $0.5 \mu s$, sur une période de modulation. Les points mesurés sont très bien reproduits par :

$$I(t) = \frac{I_{max}}{2} \left(1 - \sin\left(\frac{\pi}{2} \sin \omega_{mod} t\right) \right) \quad (6.9)$$

où $I(t)$ est l'intensité reçue. Ceci montre d'une part que la synchronisation entre le modulateur photo-élastique et le SR400 est correcte et d'autre part que l'excitation est polarisée comme attendue : pendant la première demi-période l'excitation possède un fort caractère σ^- et est "exactement" σ^- au milieu de la demi-période; de la même façon, au cours de la deuxième demi-période, l'excitation a un fort caractère σ^+ et est exactement σ^+ aux $3/4$ de la période.

Pour mesurer le taux de polarisation circulaire de la luminescence d'une boîte unique, nous avons procédé de la manière suivante : le module SR400 possède deux compteurs séparés (Gate A et Gate B); le premier compte le nombre d'événements I_- sur une fenêtre temporelle centrée sur $T/4$ et de largeur $8 \mu s$. Simultanément, le second fait de même pour une fenêtre décalée de $T/2$, en mesurant le nombre d'événements I_+ . Cependant le rapport $(I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ ne donne pas exactement le taux de polarisation circulaire, en raison des largeurs non-nulles des fenêtres de comptage. Il faut multiplier la polarisation brute, par un coefficient correcteur, qui dépend bien sûr de la largeur de la fenêtre, comme le montre la figure 6.9. Attendu que nous avons pris des portes de comptage de $8 \mu s$, il faut multiplier le taux de polarisation circulaire brute par 1.317. Pour les mesures qui vont suivre, le temps d'intégration total pour une énergie donnée de détection est de 10 secondes, soit un temps d'intégration partiel de 4 secondes pour compter le nombre de photons "co-polarisés" ou "contra-polarisés".

Résultats expérimentaux :

Nous allons maintenant montrer les mesures réalisées sur boîte unique, dans l'état X^+ , toujours en excitation intra-boîte à 1.31 eV. La figure 6.10 révèle l'influence du champ magnétique

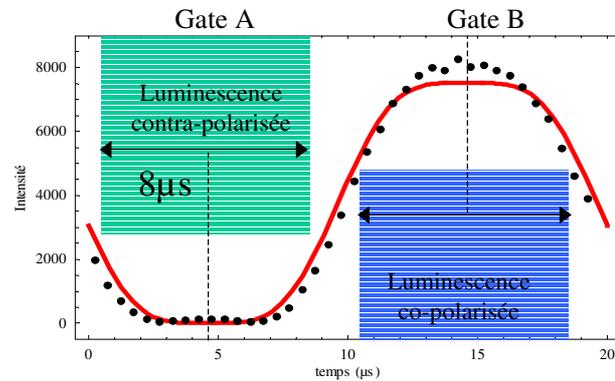


FIG. 6.8: Intensité du laser sur une période de modulation (points noirs) à 1.31 eV. En trait continu, la courbe théorique.

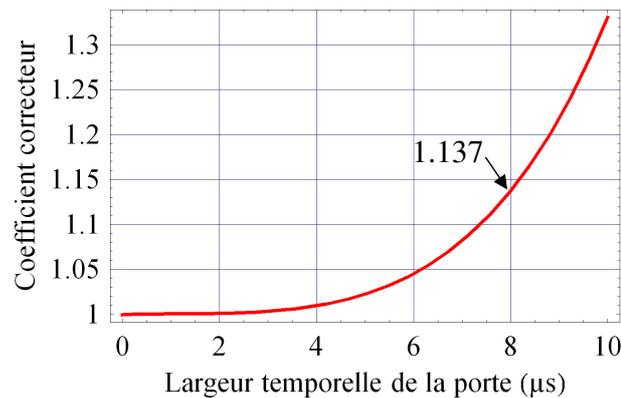


FIG. 6.9: Coefficient correcteur à appliquer à la mesure brute de polarisation circulaire pour tenir compte du défaut de polarisation circulaire de l'excitation, en fonction de la largeur temporelle des portes de comptage.

longitudinal sur la polarisation circulaire de X^+ : en absence de champ, la polarisation circulaire est désormais de $\sim 30\%$, alors que pour un champ de 240 mT, la polarisation circulaire atteint $\sim 70\%$.

En principe, deux effets peuvent expliquer l'augmentation de la polarisation circulaire intégrée temporellement :

- (i) Une augmentation du temps de vie effectif du spin électronique τ_s consécutif à la suppression du mécanisme de déphasage par les fluctuations du champ nucléaire.
- (ii) Une forte augmentation de la valeur initiale de la polarisation circulaire P_c^0 induite par le champ magnétique. Ce dernier point mérite d'être discuté. La dépendance de P_c^0 avec le champ appliqué serait envisageable si le temps de thermalisation du trion était du

même ordre de grandeur que le temps caractéristique de précession du spin électronique⁹. Dans le cas d'une excitation intra-boîte, on peut estimer que le temps de thermalisation du trion est de l'ordre de la dizaine de picosecondes si l'on considère par exemple, une excitation mixte $CM_h - S_e$ ¹⁰, et le temps de précession du spin de l'électron dans un champ de 0.24 Tesla est de $\hbar/g_e\mu_B B \sim 100$ ps. On en conclut qu'une augmentation de P_c^0 est sans doute marginale sur la plage 0-240 mT, et donc insuffisante pour expliquer notre observation.

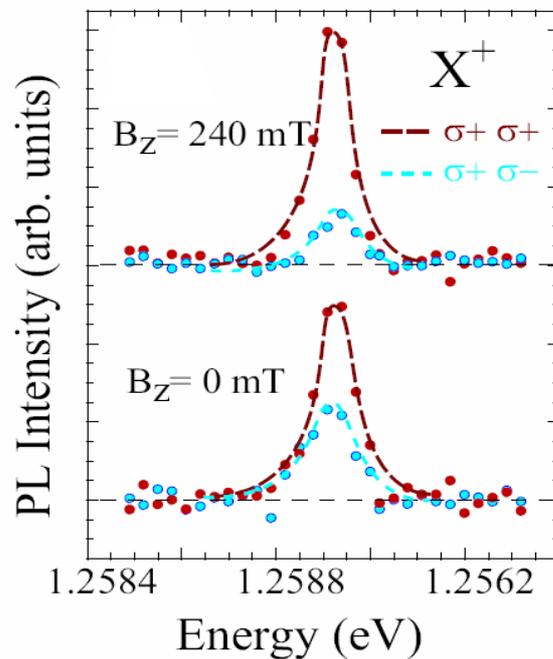


FIG. 6.10: Intensité co- et contra-polarisée de X^+ pour deux champs magnétiques appliqués. Excitation intra-boîte à 1.31 eV et alternée en polarisation σ^\pm à 50 kHz. Puissance d'excitation 5 mW.

Pour le trion négatif, on ne s'attend pas à percevoir un tel effet du fait de la quasi-absence d'interaction des trous avec les spins nucléaires. C'est effectivement le cas. Dans les mêmes conditions d'excitation polarisée alternativement σ^+ , σ^- , nous avons mesuré une polarisation déjà élevée $\sim 66\%$ en champ nul, qui n'augmente guère à 240 mT où elle passe à $\sim 69\%$. La démonstration du blocage de la relaxation peut être confirmée en confrontant quantitativement nos mesures au modèle de I. A. Merkulov *et al.*. La figure 6.11 montre la dépendance de la

⁹Les résultats de P.-F. Braun *et al.* 6.3 montrent effectivement qu'à $t = 0$, $P_c(B = 0.4T) > P_c(B = 0.1T)$; l'excitation était alors à l'énergie de la Couche de mouillage

¹⁰Dans ce cas le temps de thermalisation du trion positif est imposé par le temps de relaxation du trou sur l'état fondamental de valence.

polarisation circulaire de X^+ au champ magnétique appliqué. Les barres d'erreur correspondent à la déviation statistique pour six mesures à chaque valeur du champ.

On voit clairement deux régimes : entre 0 et 140 mT, la polarisation circulaire croît assez ra-

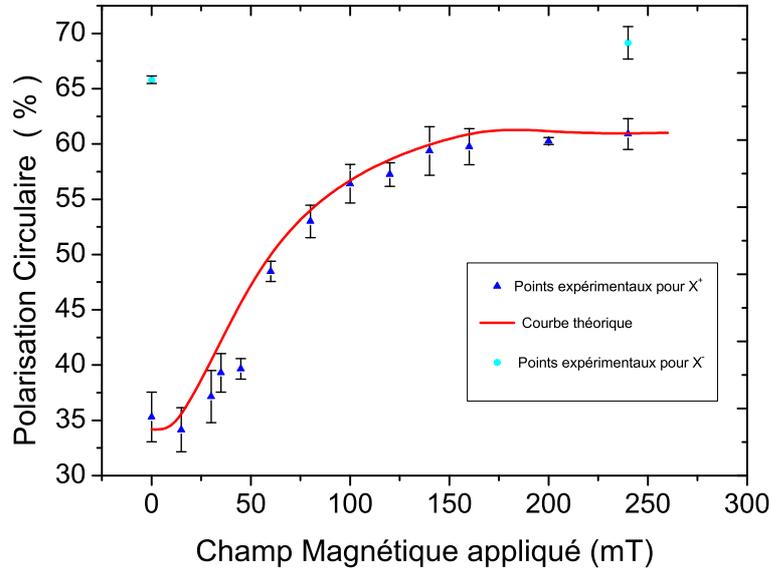


FIG. 6.11: Polarisation circulaire de X^+ en fonction du champ appliqué. La polarisation est modulée à 50 kHz. Excitation à 1.31 eV.

pidement avec le champ extérieur à partir de $\sim 34\%$, puis, au-delà de 140 mT, la polarisation circulaire sature à 61%. Ce résultat est tout-à-fait comparable avec ceux de P.-F. Braun *et. al.* Pour modéliser ce comportement avec l'équation 6.8 où l'évolution temporelle $\langle S(t) \rangle$ est donnée par le modèle de Merkulov (équation 6.7), il faut déterminer deux inconnus : le paramètre T_Δ pour cette boîte et la valeur de la polarisation initiale P_c^0 . Cette dernière, dans l'hypothèse où P_c^0 est indépendant du champ magnétique, est forcément légèrement au dessus du plateau, c'est-à-dire supérieure à 61%.

Modélisation :

La polarisation théorique intégrée temporellement peut être calculée par :

$$P_c(B) = P_c^0 \int_0^{+\infty} \frac{\langle S(t, T_\Delta) \rangle_B \exp -t/\tau_r}{\langle S_0 \rangle \tau_r} dt \quad (6.10)$$

Comme le calcul (même numérique) de $\langle S(t, T_\Delta) \rangle_B$ est assez lourd, nous avons déterminé le couple (P_c^0, T_Δ) de notre boîte le plus à même de reproduire nos mesures, de la manière suivante. Nous avons considéré les deux points limites de nos mesures, à savoir $P_c(B = 0) = 34\%$ et $P_c(B = 240 \text{ mT}) = 61\%$, et calculé pour les deux champs magnétiques correspondant, les couples (P_c^0, T_Δ) redonnant par l'équation 6.10 la polarisation mesurée, comme montré sur la figure 6.12. Nous obtenons alors deux courbes dont l'intersection nous donne la solution (c.f.

6.12). Nous avons pris un facteur de Landé électronique de 0.8 et un temps de vie radiatif de $\tau_r=700$ ps. Par cette procédure nous avons obtenu $P_c^0 = 62\%$ et $T_\Delta=500$ ps, valeurs tout-à-

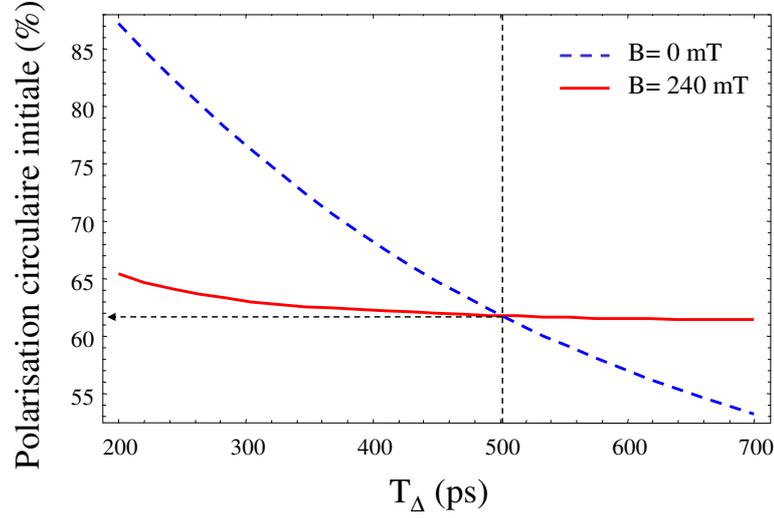


FIG. 6.12: Valeurs de la polarisation initiale P_c^0 et de T_Δ , compatibles d'après le modèle théorique avec les polarisations circulaires mesurées à 0 et 240mT.

fait admissibles d'après les mesures de P.-F. Braun *et al.*. Maintenant que les deux paramètres (P_c^0 , T_Δ) sont connus, nous pouvons calculer pour chaque valeur de B , la polarisation circulaire de X^+ , à l'aide de l'équation 6.10. Le résultat se trouve sur la figure 6.11, et montre manifestement un très bon accord avec les mesures expérimentales. La dynamique de spin de X^+ semble donc entièrement gouvernée, à basse température et aux faibles champs magnétiques, par l'interaction hyperfine.

6.4 Polarisation des noyaux en absence de champ magnétique extérieur

Il reste à comprendre maintenant plus en détail le phénomène de polarisation des spins nucléaires à champ nul. D'après la relation démontrée au chapitre 4 :

$$B_n = 2 \sum_{\alpha} \frac{x_{\alpha} Q_{\alpha} A_{\alpha}}{g_e \mu_B} \frac{\vec{B} \cdot (\vec{B} \cdot \langle \vec{S} \rangle)}{B^2 + \tilde{B}_L^2} \quad (6.11)$$

En principe les noyaux ne peuvent être polarisés à champ magnétique nul à cause de leur interaction dipôle-dipôle. Néanmoins s'il existe un champ résiduel supérieur au champ local $\tilde{B}_L \sim 0.15$ mT, alors il est possible de construire une polarisations nucléaire. Deux candidats sont à envisager : le champ magnétique terrestre qui vaut 0.05 mT (à Paris) ou bien le champ hyperfin de l'électron sur le noyau qui a été estimé au chapitre 4, entre 1 mT et 10 mT. Le champ

magnétique terrestre est moins d'un ordre de grandeur plus petit que \tilde{B}_L et pourrait alors participer partiellement à l'écrantage du champ local, comme l'ont remarqué D. Paget *et al.* dans leur article de 1977 [10]. Plus récemment, R. Oulton *et al.* ont mis en évidence des effets nucléaires à $B=0$ en s'assurant de l'exacte compensation du champ magnétique terrestre par trois paires de bobines de Helmholtz [11]. Le champ Knight serait donc à l'origine de la polarisation nucléaire en champ nul. On peut alors généraliser l'équation précédente 6.11 en tenant compte du champ total s'exerçant sur le noyau $B + b_e \langle S \rangle$ [9] :

$$B_n = 2 \sum_{\alpha} \frac{x_{\alpha} A_{\alpha} Q_{\alpha}}{g_e \mu_B} \frac{(B + b_e \langle S \rangle) [(B + b_e \langle S \rangle) \langle S \rangle]}{(B + b_e \langle S \rangle)^2 + \tilde{B}_L^2} \quad (6.12)$$

Dans l'équation 6.12, le champ Knight $b_e \langle S \rangle$ est considéré comme un champ classique. Cependant, nous devons garder à l'esprit le caractère inhomogène de b_e , imposé par les variations spatiales du module au carré de la fonction enveloppe de l'électron $|\psi(\vec{r})|^2$; si bien que deux spins nucléaires proches voisins i et j "voient" des champs Knight dont la différence $b_e^j - b_e^i$ est proportionnelle à $\vec{\nabla} |\psi(\vec{r}_i)|^2 \cdot (\vec{r}_i - \vec{r}_j)$. Le couplage hyperfin n'est pas le même sur deux sites du réseau. La conséquence est importante puisque les splittings Zeeman nucléaires effectifs entre deux spins nucléaires voisins sont alors différents, entraînant un blocage partiel du mécanisme de diffusion de spin : plus le désaccord en énergies est grand, plus le taux de transitions flip-flop, entre sous-niveaux Zeeman nucléaires, médiées par l'interaction dipolaire est faible, d'où une diffusion de spin moins efficace [12].

Ainsi, un certain consensus commence à s'établir dans la communauté des physiciens travaillant sur le sujet pour mettre en avant le rôle joué par le champ Knight. La phénoménologie observée à champ nul sur les trions positifs X^+ (*c.f* figure 6.7) va dans ce sens. Avant d'aller plus loin, nous allons compléter ce tableau en discutant d'effets similaires observés sur le trion négatif.

6.4.1 Dépendance du temps de dépolarisation nucléaire T_d dans le régime des faibles champs magnétiques

Nous avons répété les mesures du déplacement Overhauser δ_n en fonction de la polarisation circulaire de la luminescence de X^- , obtenues en tournant pas à pas la lame quart d'onde définissant la polarisation de l'excitation, pour deux valeurs de champ magnétique 0 mT et 240 mT. Pour faire cette mesure, nous avons excité en résonance une transition entre niveaux confinés de la boîte (probablement entre niveaux P), ce qui nous a permis d'avoir un très fort signal de luminescence, une très forte polarisation circulaire et finalement une mesure très peu bruitée des splittings de raie. Les résultats sont reportés sur la figure 6.13. Ils montrent à l'évidence qu'en champ nul la polarisation nucléaire est du même ordre de grandeur que celle générée dans un champ de 240 mT de plusieurs ordres de grandeurs supérieur au champ local B_L . Toujours en utilisant le modèle décrivant la polarisation dynamique des spins nucléaires, développé au chapitre précédent, nous pouvons reproduire avec un très bon accord les points expérimentaux, y compris à zéro Tesla. Il est intéressant de noter que la courbe $\delta_n = f(P_c)$ à $B=0$ mT est symétrique (du fait de l'absence de champ appliqué). Il est alors très instructif de comparer les temps

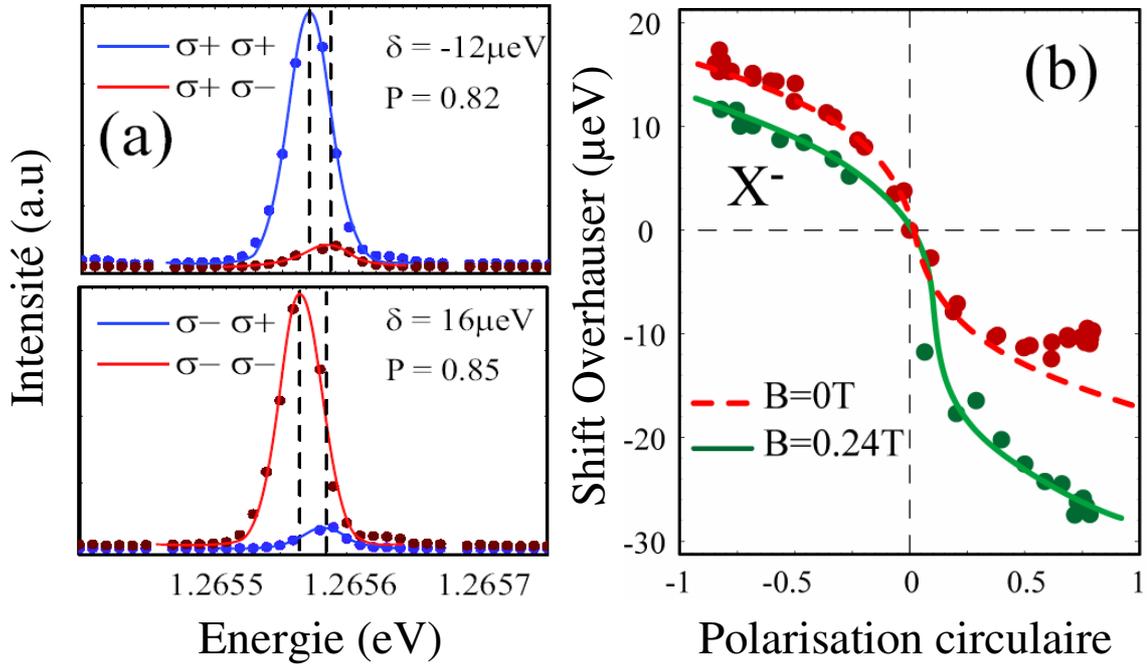


FIG. 6.13: a) spectres de luminescence de X^- résolus en polarisation pour une excitation σ^+ puis σ^- . b) Shift Overhauser en fonction de la polarisation circulaire pour $B = 0$ mT et $B = 240$ mT

de dépolarisation T_d obtenus par l'ajustement à notre modèle pour les deux valeurs de champ magnétique ¹¹. Nous trouvons que :

$$T_d(0.24 T)/T_d(0. T) \sim 1.5$$

Visiblement, le champ magnétique contribue faiblement à diminuer les mécanismes de dépolarisation. On peut tirer de cette constatation deux conclusions alternatives :

- ◇ Soit il existe à champ nul un champ Knight assez fort qui écranter suffisamment certains mécanismes de dépolarisation de telle sorte qu'un champ supplémentaire de 240 mT n'améliore que modestement l'écrantage.
- ◇ Soit on se trouve dans un régime où la dépolarisation des noyaux demeure en fait très efficace, y compris dans un champ de 240 mT, de sorte que l'obtention d'un déplacement Overhauser significatif (mais bien inférieur à la valeur maximale envisageable avec des électrons polarisés à 80%) résulte de la compétition avec un taux de polarisation nucléaire $T_{1e}^{-1} \tilde{Q} \langle S_z^e \rangle$ très élevé.

Cette mesure ne permet donc pas de trancher.

¹¹ Les autres paramètres du modèle étant considérés comme indépendants du champ magnétique.

6.4.2 Evaluation du champ Knight

Pour comprendre l'origine de la polarisation nucléaire en champ nul dans les boîtes InAs, la mesure directe du champ Knight doit être envisagée. Pour cela, on peut adopter deux stratégies :

- ◇ La première consiste à appliquer un petit champ anti-parallèlement au champ Knight, suivant l'axe optique, de manière à le compenser "exactement". Dans ce cas, comme le montre l'équation 6.12, le champ Overhauser s'annule, avec comme conséquence une diminution de la polarisation circulaire.
- ◇ La deuxième utilise la configuration Voigt : le champ total vu par les noyaux est alors la somme du champ Knight et d'un champ transverse $B_x \vec{u}_x + B_e \vec{u}_z$, qui définit la direction privilégiée de la polarisation nucléaire. Le spin électronique précesse autour du champ Overhauser ¹² Quand celui-ci est quasiment perpendiculaire à l'axe optique, la polarisation électronique diminue. Des explications plus précises concernant les effets nucléaires à petit champ, peuvent être trouvées dans *Optical Orientation* [9], en particulier dans le paragraphe "*Cooling down of nuclear spin system in electron field*". Néanmoins l'image simple à retenir est que le champ Knight assure le refroidissement des spins nucléaires et que l'orientation de la polarisation nucléaire est contrôlée par le petit champ transverse B_x .

6.4.2.1 Expérience en configuration Faraday

Les résultats qui vont être présentés ici sont ceux de C. W. Lai *et al.*, travaillant dans l'équipe de A. Imamoglu à l'ETH [8]. Ils ont étudié les effets nucléaires sur un trion négatif en présence d'un petit champ magnétique longitudinal (*c.f* figure 6.14).

Les courbes tracées sur les mesures du splitting total et de la polarisation circulaire montrent un "creux", centré sur ± 0.6 mT suivant la polarisation d'excitation. Ceci semble bien indiquer la compensation du champ Knight en accord avec l'équation 6.12. On remarque toutefois que le splitting n'est pas nul, au minimum de la polarisation circulaire. Pour expliquer cela, les auteurs invoquent l'inhomogénéité du champ Knight : la condition $B_z = -B_e$ n'est sans doute remplie que pour une petite classe de noyaux. De plus, ils constatent des variations du champ Knight avec la puissance d'excitation, indiquant que ce dernier dépend sans doute de la fraction du temps pendant lequel l'électron de spin orienté reste en interaction avec le système nucléaire. Bien que ce résultat constitue, jusqu'à présent, la seule mesure directe du champ Knight sur boîte quantique unique, on peut s'interroger sur la faible valeur trouvée.

6.4.2.2 Expérience en configuration Voigt

Pour estimer le champ Knight, nous avons effectué une mesure sur un ensemble de boîtes (échantillon n-i-Schottky présenté au chapitre 4) en utilisant un cryostat magnéto-optique à bo-

¹²le champ B_x , de l'ordre du mT représente un splitting électronique de ~ 10 neV, bien plus faible que les 10 μ eV constatés dû au champ nucléaire à champ nul

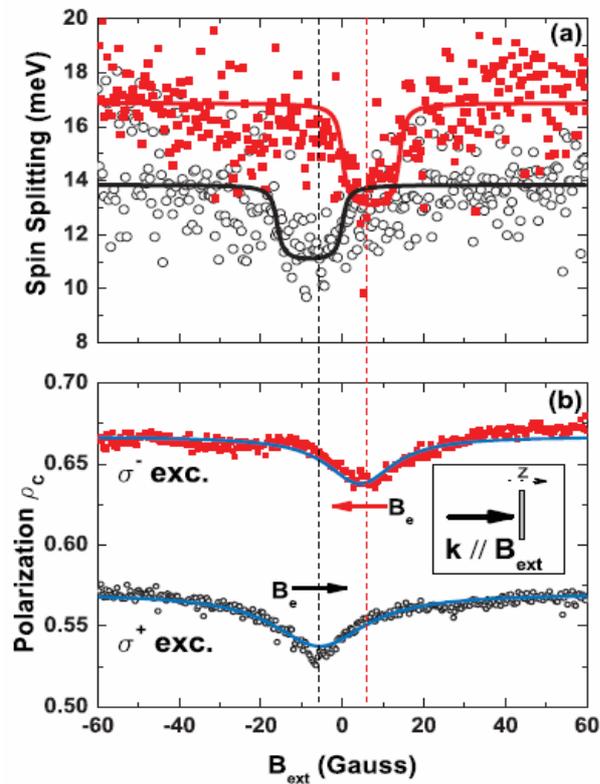


FIG. 6.14: a) splitting total b) polarisation circulaire en fonction du champ appliqué d'un trion X^- d'une boîte unique InAs. D'après [8]

binés "splittées" à une température de 1.8 K. À la tension de grille de -200 mV, la luminescence est alors majoritairement celle de X^+ . Les boîtes étudiées émettent à 1.27 eV et l'énergie d'excitation est à 1.34 eV. Les intensités de photoluminescence sont mesurées en intégrant sur la fenêtre spectrale de la CCD, soit 10 meV. Les résultats sont présentés sur la figure 6.15. En dépit du bruit de ces mesures, il semble bien que la polarisation circulaire de X^+ montre une singularité : elle possède un maximum de 45%, puis diminue à $\sim 42.5\%$ pour un champ appliqué de ± 2 mT ; ceci correspond bien à la valeur attendue du champ Knight, de l'ordre du mT. Inversement (voir la figure 6.16), quand la polarisation de l'excitation est modulée à 50 kHz (avec une détection mono-canal par comptage de photons sur des portes temporelles), la polarisation circulaire de X^+ ne montre plus cette singularité.

Il faudrait bien sûr reprendre cette expérience avec un pas en champ magnétique beaucoup plus petit que le pas utilisé, 1 mT ici. Cependant ce premier résultat semble assez proche de ceux de R. Oulton *et al.* [11] qui ont réalisé une expérience similaire sur un ensemble de boîtes dopées-n, où la polarisation négative, bien comprise sur ces échantillons [13, 14], permet de sonder le spin de l'électron résident.

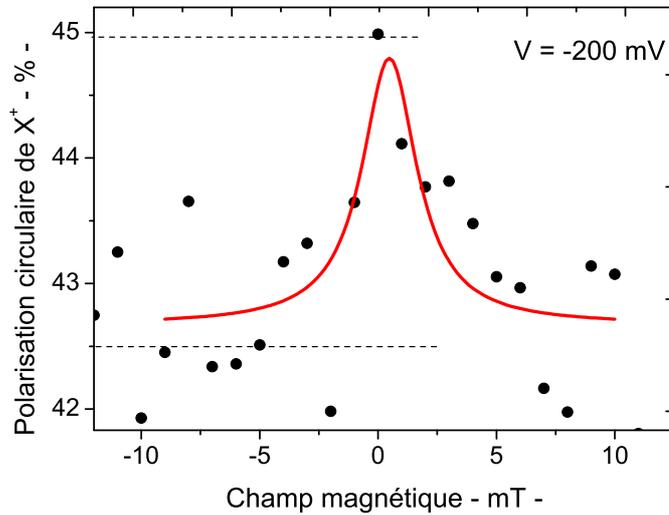


FIG. 6.15: Polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes d'un échantillon n-i-Schottky, dans le régime de photoluminescence des trions positifs, en fonction d'un champ magnétique perpendiculaire à l'axe optique. La polarisation de l'excitation est fixe.

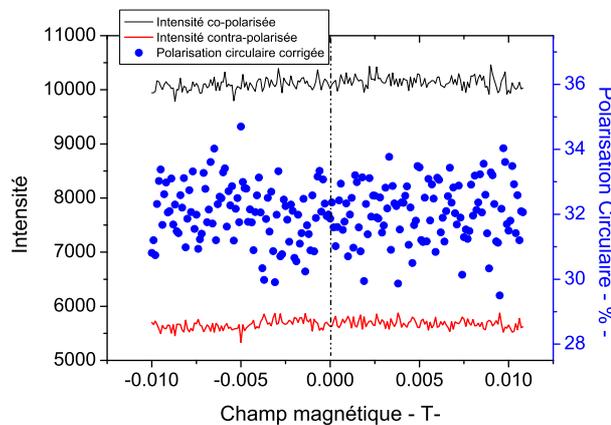


FIG. 6.16: Polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes d'un échantillon n-i-Schottky, dans le régime de photoluminescence des trions positifs, en fonction d'un champ magnétique perpendiculaire à l'axe optique. La polarisation de l'excitation est modulée entre σ^+ et σ^- à 50 kHz. Tension à -0.2 V. Excitation à 1.34 eV. Détection à 1.27 eV.

Leur résultat (*c.f* figure 6.17) montre que la polarisation circulaire négative passe de -27% à -23% quand le champ transverse vaut ~ 1 mT. Ceci donne encore une fois une estimation du champ Knight.

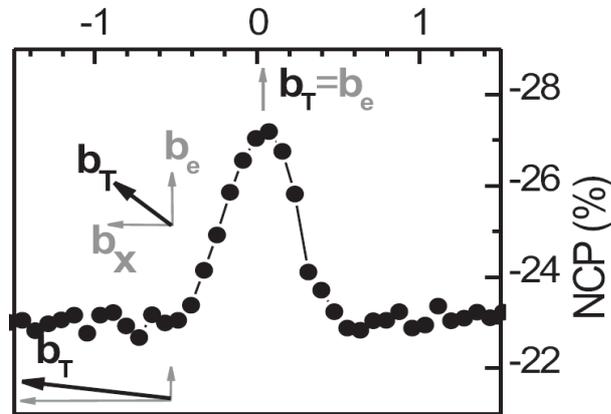


FIG. 6.17: Polarisation circulaire négative en fonction du champ transverse d'un ensemble de boîtes dans une matrice dopée n , en fonction du champ magnétique transverse (unités mT). D'après [11].

Nous avons aussi obtenu un résultat préliminaire sur boîte quantique unique en champ magnétique transverse. Pour cette expérience, l'aimant permanent a été placé perpendiculairement à l'axe optique en dehors du cryostat à flux continu d'hélium, fournissant un champ transverse de l'ordre du mT au niveau de l'échantillon. Nous avons mesuré en champ nul le shift Overhauser à huit reprises, montrant que $\delta_n = 12.1 \pm 2.4 \mu\text{eV}$. Puis une série de onze mesures consécutives avec le champ transverse de $\sim 1 \text{ mT}$ donne $\delta_n = 9.4 \pm 3 \mu\text{eV}$. Une petite tendance apparaît : alors que le taux de polarisation circulaire de X^+ ne change quasiment pas ($P_c(B_t = 0) = 63.6 \pm 2\%$ et $P_c(B_t \sim 1 \text{ mT}) = 62.0 \pm 1\%$), le décalage Overhauser chute d'environ $3 \mu\text{eV}$. Ceci démontre qu'un champ transverse, de l'ordre ou inférieur à B_e ne semble pas détruire la polarisation nucléaire. L'expérience a été menée sous très forte excitation optique (10 mW) ; comme il est très difficile de contrôler de faibles champs magnétiques avec un aimant permanent en jouant sur la distance, il aurait été très instructif de faire plusieurs séries de mesures en faisant varier la puissance d'excitation à champ constant.

6.4.3 Polarisation dynamique des spins nucléaires observée sur ensemble de boîtes

Dans ce paragraphe, nous quittons le domaine des très petits champs magnétiques appliqués. Nous allons montrer les résultats obtenus sur ensemble de boîtes, révélant encore une fois, la signature de la polarisation nucléaire en champ nul.

Nous avons étudié l'échantillon ensemble de boîtes à contrôle électrique de l'état de charge, en fonction du champ longitudinal, et de la tension de grille. Le résultat de l'expérience est reporté sur la figure 6.19, où l'échelle de couleur (du bleu au rouge) représente la polarisation circulaire de la luminescence. Les régions de stabilité des excitons chargés sont clairement identifiées par les variations de la polarisation circulaire en fonction de la tension de grille pour $B_z = 0$: entre -0.5 V et -0.2 V , la polarisation circulaire vaut $\sim 45\%$, indiquant que la luminescence est majoritairement issue de X^+ , puis entre -0.2 V et 0.25 V volt, P_c chute abruptement dans la ré-

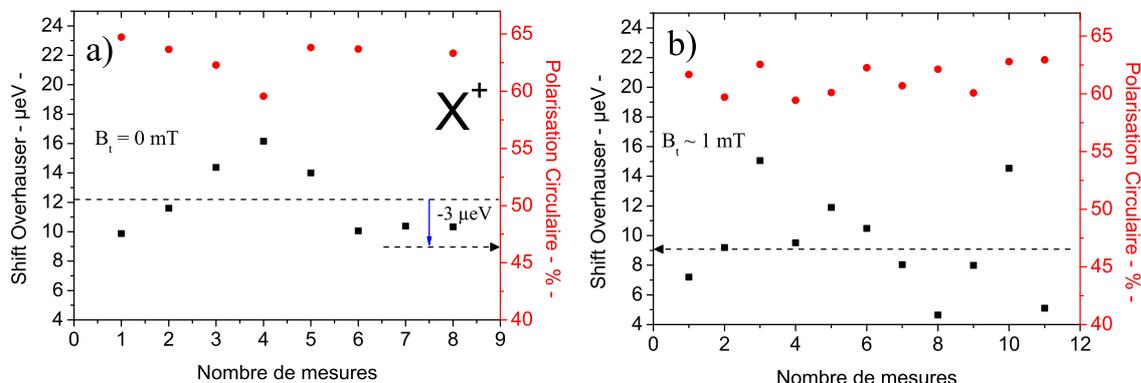


FIG. 6.18: a) Shift Overhauser de X^+ en champ nul. b) Shift Overhauser sous champ transverse de $\sim 1 \text{ mT}$. Excitation à 1.31 eV . Puissance 10 mW .

gion de stabilité de l'exciton neutre. Dans la région où la boîte possède un électron résident, entre 0.25 V et 0.5 V , la polarisation circulaire remonte, indiquant le blocage progressif de l'interaction d'échange électron/trou par la formation de plus en plus rapide du trion négatif [15]. Au delà de 0.5 V , les boîtes sont stables à deux électrons résidents, au quel cas, la polarisation circulaire de la luminescence des trions négatifs est très forte pour une excitation intra-boîte. Et enfin, à partir de 0.75 V , la polarisation circulaire chute quand les boîtes entrent dans le régime X^{2-} . En plus de cela, les variations d'intensité de luminescence montrées au chapitre 2, confirment l'identification tirée de l'évolution de la polarisation circulaire, en fonction de la tension de grille.

Les effets nucléaires sont perceptibles sur la figure 6.19 : on voit que le minimum de polarisation circulaire dans la zone de tension correspondant à X^+ , n'est pas centré sur $B_z = 0$, mais légèrement décalé vers les valeurs $B_z > 0$. Une confirmation est apportée par l'expérience dont le résultat est présenté sur la figure 6.20 : dans le cas où la polarisation de l'excitation est modulée à 50 kHz , le minimum de la polarisation circulaire de X^+ est centrée sur $B_z = 0$. Ce résultat vient consolider le fait que le décalage constaté en excitation continue provient bien d'un phénomène nucléaire.

Afin de mettre en évidence plus quantitativement la signature du champ nucléaire sur cette mesure d'ensemble, nous avons déterminé par une procédure numérique la position du minimum de polarisation circulaire en faisant un fit avec une Lorentzienne décalée pour chaque tension. Les résultats reportés sur la figure 6.21 sont éloquentes : le minimum de la polarisation circulaire est décalé de l'ordre de $+75 \text{ mT}$ pour le trion positif, environ zéro pour l'exciton neutre, et devient négatif, à $\sim -30 \text{ mT}$, dans dans le régime X^- . Le changement de signe du champ magnétique au minimum de la polarisation circulaire entre X^+ et X^- traduit à l'évidence la même physique de la polarisation dynamique des noyaux que l'on avait observée sur une boîte quantique unique : elle est gouvernée soit par l'électron polarisé lors de l'excitation optique (pour X^+) soit par l'électron dans l'état final de la recombinaison radiative (pour X^-).

Sur ensemble de boîtes, il est bien sûr inenvisageable de mesurer directement un quelconque décalage Overhauser, mais la rétroaction du champ nucléaire sur la polarisation du spin élec-

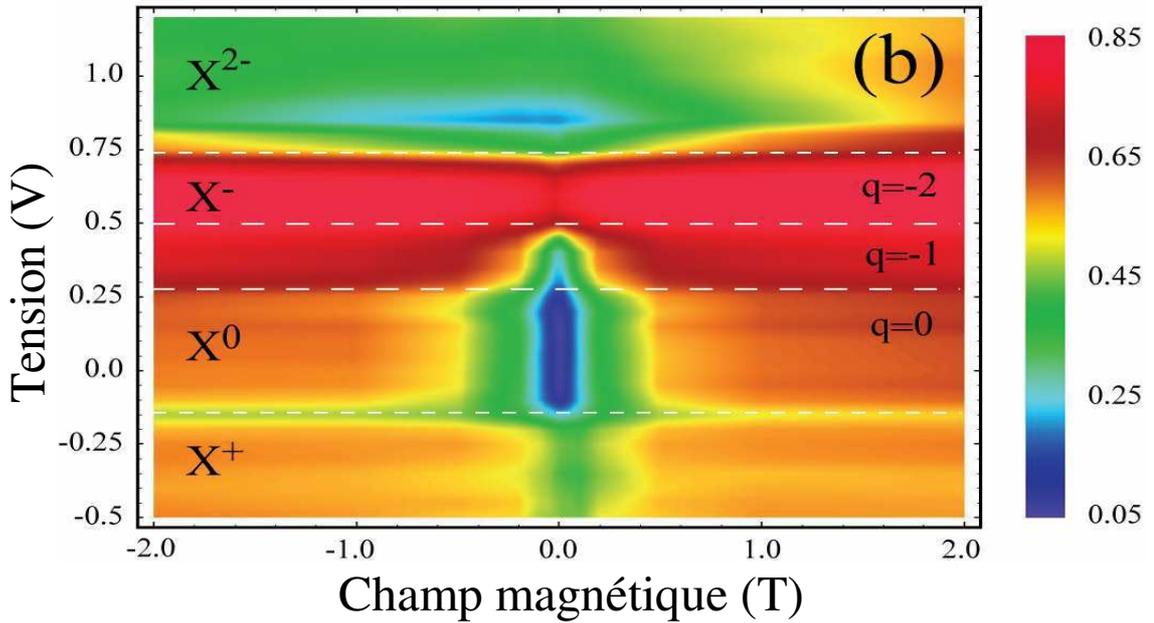


FIG. 6.19: Polarisation circulaire d'un ensemble de boîtes quantiques, représentée sur une échelle de couleurs, en fonction du champ magnétique longitudinal et de la tension appliquée. Excitation intra-boîte à 1.34 eV. Energie de détection 1.27eV. Excitation polarisée circulairement.

tronique permet de comprendre qualitativement ce qui se passe : si l'on admet que le champ appliqué compense le champ Overhauser $B_z = -B_n$, on peut interpréter le minimum de polarisation circulaire des trions comme étant la conséquence de l'égalité précédente. Dans ce cas, le champ total vu par l'électron est essentiellement nul, d'où une diminution de la polarisation circulaire. Cette explication permet alors de rendre cohérent le changement de signe relatif du champ donnant le minimum de polarisation circulaire des trions positifs et négatifs. Il est intéressant de noter que I.V. Ignatiev *et al.* [16] montrent le même phénomène sur ensemble de boîtes quantiques InP/GaAs pour le régime X^- . Implicitement, cette interprétation signifie qu'il existe une polarisation nucléaire à champ nul. Ceci explique, comme sur boîte unique, la forte polarisation circulaire pour un ensemble de boîtes, dans le régime X^+ de 46%.

Peut-on aller plus loin dans la description des résultats de la figure 6.21 ? Si, comme on le pense le champ extérieur compense exactement la partie statique du champ Overhauser, alors le spin de l'électron est soumis aux fluctuations nucléaires, quand la condition $|B_z + B_n| \lesssim \Delta_B$ est vérifiée. Ceci signifie alors que l'évolution de la polarisation circulaire de X^+ est pilotée par deux équations couplées :

- (i) la première issue du mécanisme de relaxation de Merkulov :

$$P_c(B) = P_c^0 \int_0^\infty \langle S(t, B + \delta_n/g_e\mu_B) \rangle \frac{\exp -t/\tau_r}{\tau_r} dt \quad (6.13)$$

où nous devons considérer le champ total s'exerçant sur l'électron.

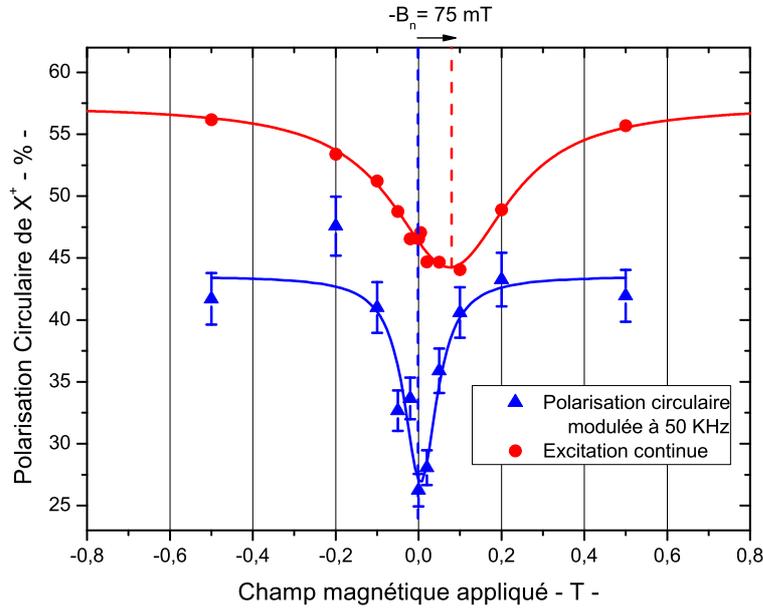


FIG. 6.20: Dépendance en champ magnétique de la polarisation circulaire pour une excitation polarisée continûment (ronds) ou modulée à 50 kHz (triangles) pour une tension de -0.2 V correspondant à X^+ . Excitation à 1.34 eV. Détection à 1.27 eV.

(ii) et l'autre équation qui décrit la polarisation dynamique des noyaux, sous le pompage optique avec une polarisation P_c^0 :

$$\delta_n = \frac{A\tilde{Q}P_c^0}{1 + \kappa[(\hbar/\tau_c)^2 + (g_e\mu_B B + \delta_n)^2]} \quad (6.14)$$

En utilisant le jeu de paramètres trouvés sur boîtes uniques, les équations 6.14 et 6.13, ne reproduisent pas parfaitement l'évolution de la polarisation circulaire de X^+ avec le champ magnétique. Comme le montre la figure 6.22a, le profil de la courbe $P_c(X^+) = f(B)$ révèle une forme très asymétrique. Alors qu'on peut voir en haut de la figure 6.21 pour une tension appliquée de -0.4 V, que l'ajustement Lorentzien donne un bon accord avec les points expérimentaux, symétriques par rapport à la droite verticale $B_z = +75 \text{ mT}$. Néanmoins, en diminuant le temps de corrélation d'un facteur cinq, l'allure de la courbe devient symétrique autour de son minimum, comme le montre 6.22b, en accord avec les résultats expérimentaux.

Nous ne devons pas oublier la dépendance des mécanismes de dépolarisation nucléaire avec le champ magnétique, constatée sur boîtes unique même pour les faibles champs magnétiques appliqués : comme nous ne connaissons pas cette évolution de κ avec B, on ne peut convertir le décalage du minimum de polarisation en shift Overhauser, via l'équation 6.14.

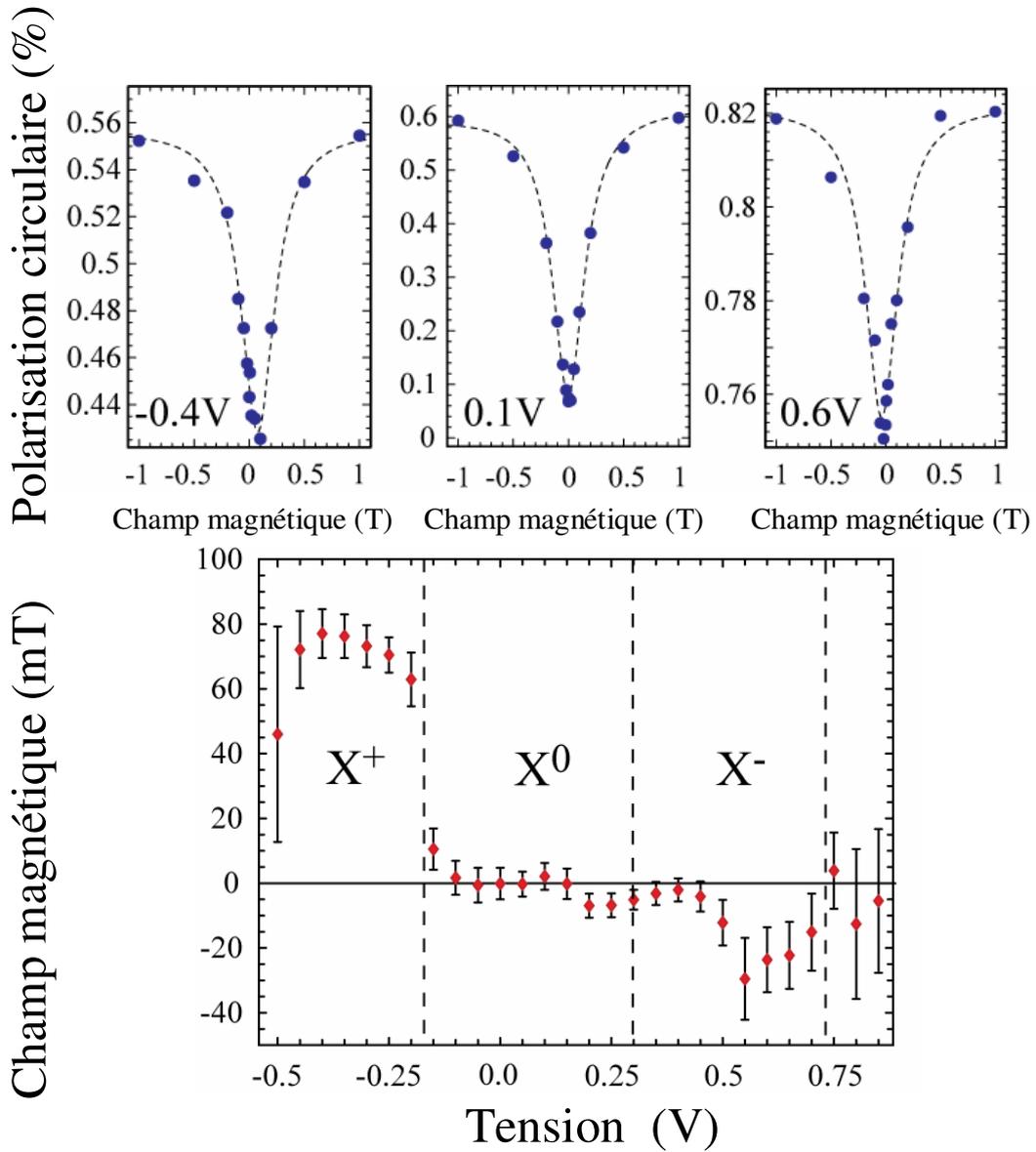


FIG. 6.21: En haut : coupes $P_c = f(B)$ pour différentes tensions correspondant aux régimes X^+ , X^0 et X^- . En bas : Champ magnétique au minimum de polarisation circulaire en fonction de la tension de grille.

6.5 Bilan

Au cours de ce chapitre, nous avons mis en évidence, par l'étude d'une boîte quantique unique, le mécanisme responsable de la relaxation du spin électronique, confirmant les expériences récentes réalisées sur un ensemble de boîtes dopées chimiquement, dans le groupe de Toulouse [6]. La comparaison des mesures en excitation polarisée alternativement ou continue

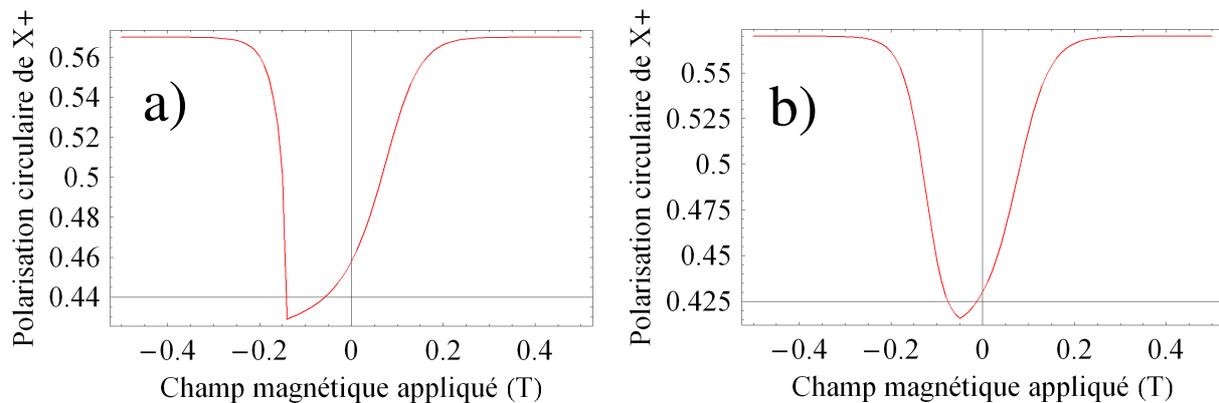


FIG. 6.22: a) Modélisation en utilisant le jeu de paramètres trouvé pour le X^+ (Voir chapitre 5). b) Modélisation en prenant un temps de corrélation τ_c de 150 ps.

s'est révélée déterminante pour démontrer le rôle de l'interaction hyperfine. En particulier, nous avons montré que le pendant de cette relaxation de spin est la construction d'un champ nucléaire, y compris en l'absence d'un champ magnétique externe, lequel s'avère largement assez fort pour finalement ralentir le processus de relaxation de spin. Cette rétroaction souligne le couplage fort (au sens classique) entre le spin électronique et l'ensemble des spins nucléaires que l'on avait déjà rencontré au chapitre précédent mais dans le régime des champs magnétiques forts. Ces effets particulièrement marqués dans les boîtes quantiques InAs, sont dans leur nature intrinsèques à la plupart des semiconducteurs, hormis le Silicium dont les noyaux ont un spin total nul, et ne peuvent de ce fait être négligés dans les protocoles de manipulation du spin.

Bibliographie

- [1] S. Lee, P. Von Allmen, F. Oyafuso, G. Klimeck, and K. Birgitta Whaley. Effect of electron-nuclear spin interactions for electron-spin qubits localized in InGaAs self-assembled quantum dots. *Journal of applied physics*, 97(043706), 2005.
- [2] V.V. Dobrovitski, J.M Taylor, and M.D. Lukin. Long-lived memory for electronic spin in a quantum dot : Numerical analysis. *Physical Review B*, 73(245318), 2006.
- [3] I.A Merkulov, Al.L Efros, and M. Rosen. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Physical review B*, 65(205309), 2002.
- [4] A. V Khaetskii, D. Loss, and L. Glazman. Electron spin decoherence in quantum dots due to interaction with nuclei. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 88(18), 2002.
- [5] A. Khaetskii, D. Loss, and L. Glazman. Electron spin evolution induced by interaction with nuclei in a quantum dot. *Physical Review B*, 67(195329), 2003.
- [6] P.-F Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, P. Renucci, V.K Kalevich, K.V Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto. Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Physical Review Letter*, 94(116601), 2005.
- [7] A. Ebbens, D.N Krizhhanovski, A.I Tartakovski, F. Pulizzi, T. Wright, A.V Savelyev, M.S Skolnick, and M. Hopkinson. Optical orientation and control of spin memory in individual InGaAs quantum dots. *Physical Review B*, 72(073307), 2005.
- [8] C.W Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu. Knight-field-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots. *Physical Review Letters*, 96(167403), 2006.
- [9] V.M. Agranovich and A.A. Maradudin, editors. *Optical Orientation*, volume 8. North-Holland, 1984.
- [10] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V.I Safarov. Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions. *Physical review B*, 15(12), 1977.
- [11] R. Oulton, A. Greilich, S. Yu Verbin, R.V Cherbunin, T. Auer, D.R Yakovlev, M. Bayer, V. Starache, D. Reuter, and A. Wieck. Millisecond spin lifetimes in quantum dots at zero applied magnetic field due to strong electron-nuclear interaction. *arXiv : cond-mat/0505446 v3*, 2006.
- [12] C. Deng and X. Hu. Selective dynamic nuclear spin polarization in a spin-blocked double dot. *Physical Review B*, 71(033307), 2005.

-
- [13] S. Cortez, O. Krebs, S. Laurent, M. Senes, X. Marie, P. Voisin, R. Ferrera, G. Bastard, J.M. Gérard, and T. Amand. Optically driven spin memory in n-doped InAs-GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 89(207401), 2002.
- [14] S. Laurent, M. Senes, O. Krebs, V.K. Kalevich, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin. Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled InAs/GaAs quantum dots under nonresonant optical excitation. *Phys. Rev. B*, 73(235302), 2006.
- [15] S. Laurent, B. Eble, O. Krebs, A. Lemaitre, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin. Electrical control of hole spin relaxation in charge tunnable InAs/GaAs quantum dots. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 94(147401), 2005.
- [16] Ivan V. Ignatiev, Sergey Yu. Verbin, Ll'ya Ya. Gervolin, W. Maruyama, Bipul Pal, and Y. Masumoto. Effect of nuclear spins on the electron spin dynamics in negatively charged InP QDs. *arXiv :cond-mat/0508698v1*, 2005.

Conclusion

Nos travaux ont mis en évidence l'importance du couplage électrons/noyaux dans les boîtes quantiques de semiconducteur InAs/GaAs. Nous pouvons brièvement rappeler les principaux faits marquants, rapportés dans ce manuscrit :

- (i) On a montré sur un ensemble de boîtes comme sur boîte unique que la polarisation circulaire de la photoluminescence peut être très forte ($> 70\%$) lorsque les boîtes contiennent deux électrons résidents et un trou (état X^-). Ce fait expérimental est associé forcément à une durée de vie du spin du trou beaucoup plus longue que la durée de vie radiative ($1 ns$). Ce résultat a été confirmé par une mesure résolue en temps qui donne une limite inférieure de 20ns au temps de relaxation du spin du trou (c.f Chap. 3). Ce blocage de la relaxation est dû à la quasi-absence d'interaction hyperfine des trous avec les noyaux et permet de considérer le spin du trou comme un candidat alternatif au spin de l'électron pour réaliser des calculs quantiques.
- (ii) Nous avons mis en évidence la polarisation dynamique des spins nucléaires de la boîte : le spin de l'électron est transféré puis accumulé vers le système nucléaire (effet Overhauser). Cet effet a d'abord été révélé en présence d'un champ magnétique longitudinal $B_z = 0.2$ Tesla. Un effet original a été démontré : l'état de charge de la boîte (X^+/X^-) déterminé par la tension de grille appliquée sur l'échantillon, permet de "contrôler" le sens du champ Overhauser.
De plus, le mécanisme microscopique de construction de la polarisation nucléaire a été étudié finement en variant différents paramètres expérimentaux, mettant en lumière des effets non-linéaires importants.
- (iii) En modulant la polarisation circulaire rapidement (50 kHz), on s'affranchit des effets nucléaires statiques décrits plus haut. On a ainsi révélé un dernier phénomène médié par l'interaction hyperfine : les fluctuations de l'environnement nucléaire, équivalentes à un champ magnétique aléatoire, participe à un mécanisme de relaxation partielle du spin de

l'électron. En accord avec les prédictions théoriques de I.A. Merkulov, nous avons montré qu'un champ magnétique longitudinal de ~ 100 mT s'avère suffisant pour bloquer ce processus de relaxation. Nos expériences sur boîtes quantiques uniques confirment les résultats de nos collaborateurs toulousains qui ont montré le même phénomène, par des expériences résolues en temps sur un ensemble de boîtes dopées p chimiquement.

A l'issue de ce travail, plusieurs questions restent ouvertes.

Notamment, le ou les mécanismes de dépolarisation nucléaire restent mal compris, et difficilement identifiables. Cependant nous avons établi une méthode permettant de quantifier le temps caractéristique des processus de dépolarisation, participant à l'établissement de la polarisation nucléaire moyenne : $\langle \tilde{I}_z \rangle = \frac{T_d}{T_d + T_{1e}} \tilde{Q} \langle S_z^e \rangle$. En mesurant la réponse du système nucléaire pour toutes les valeurs de la polarisation électronique, nous pouvons estimer le temps moyen de dépolarisation (c.f chap V), en ajustant les courbes $\delta_n = f(P_c)$ par notre modèle. Les effets quadrupolaires ont souvent été invoqués, dans plusieurs articles récents, comme étant responsables du mécanisme de dépolarisation, dans le régime des faibles champs magnétiques. Afin de conclure quant aux conséquences de l'interaction quadrupolaire, une piste serait d'examiner les effets d'un champ électrique latéral, afin de déplacer la fonction enveloppe de l'électron vers un bord de la boîte où, à priori les contraintes sont plus fortes en raison d'une composition d'avantage inhomogène : l'observation d'une chute du déplacement Overhauser en fonction de l'intensité du champ électrique, tout en mesurant une polarisation circulaire forte, pourrait être interprétée comme une signature des effets quadrupolaires.

D'autres applications pourraient être tirées des effets nucléaires dans les boîtes quantiques, par exemple pour extraire des informations quantitatives sur la composition moyenne des boîtes d'InGaAs. Des expériences de détection optique de la résonance magnétique nucléaire, sur boîte unique d'InGaAs, similaires à celles réalisées par D. Gammon *et al.*¹³ permettraient sans doute, en analysant l'intensité relative des absorptions radio-fréquences des différents isotopes présents dans la boîte quantique, d'accéder *in situ* à sa composition, avec l'avantage de ne pas modifier l'environnement de la boîte.

Enfin, nous avons mis en évidence le refroidissement des spins nucléaires dans le champ hyperfin de l'électron, semblant montrer qu'il serait plus énergétiquement favorable à l'électron confiné dans la boîte quantique, d'être "accompagné" par une polarisation des spins nucléaires. Si tel est le cas, cela conduirait à recourir à une nouvelle description des états électroniques en terme de polaron nucléaire (électron \otimes polarisation nucléaire induite). Merkulov¹⁴ a prédit la formation d'un tel état localisé sur des donneurs dans le matériau massif, dans les conditions d'une très basse température de spins nucléaires obtenue par pompage optique des électrons. Le polaron nucléaire serait caractérisé par une dynamique très lente ; deux articles récents, l'un concernant

¹³D. Gammon *et al.*, Nuclear spectroscopy in single quantum dots : Nanoscopic raman scattering and nuclear magnetic resonance, *Science*, **277**(5322) :85-88, 1997

¹⁴I.A. Merkulov *Phys. of the solid states* **40**,930 (1999)

une étude sur ensemble de boîtes ¹⁵, et l'autre sur boîtes quantiques uniques de semiconducteur *II/VI* ¹⁶ ont justement montré des dynamiques de la polarisation circulaire photo-induite caractérisées par un temps de relaxation allant de $100 \mu s$ à $1 ms$. Cependant ces résultats ne constituent pas une preuve formelle de la formation de polaron nucléaire, puisque ces dynamiques lentes restent compatibles avec une relaxation propre aux spins nucléaires. De toute évidence, de nouvelles expériences semblent nécessaires afin de confirmer ou d'infirmer l'établissement d'un état polaron.

¹⁵R. Oulton *et al.*, Millisecond spin lifetimes in quantum dots at zero applied magnetic field due to strong electron-nuclear interaction, arXiv :cond-mat/**0505446** v3

¹⁶I.A Akimov *et al.*, Electron Spin Dynamics in a Self-Assembled Semiconductor Quantum Dot : The Limit of Low Magnetic Fields, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 056602 (2006)

