



**HAL**  
open science

# Étude de la dynamique de spin du trou dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs : pompage optique, relaxation, effets nucléaires

François Fras

► **To cite this version:**

François Fras. Étude de la dynamique de spin du trou dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs : pompage optique, relaxation, effets nucléaires. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT : . tel-00839368

**HAL Id: tel-00839368**

**<https://theses.hal.science/tel-00839368>**

Submitted on 18 Jul 2013

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

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

---

**Thèse de doctorat**  
**Université Pierre et Marie Curie, Paris VI**

Spécialité : Physique de la matière condensée

*présentée par*

**François FRAS**

**Étude de la dynamique de spin du trou  
dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs :  
Pompage optique, Relaxation, Effets nucléaires**

Soutenue publiquement le 2 décembre 2011 devant le jury composé de :

Rapporteur	Lucien Besombes	Chargé de recherche, Institut Néel-CNRS
Rapporteur	Guillaume Cassabois	Professeur, Université Montpellier 2
Examineur	Thierry Amand	Directeur de recherche, LPCNO
Examineur	Olivier Krebs	Chargé de recherche, LPN-CNRS
Examineur	Jérôme Tignon	Professeur, Université Paris 6
Directrice de thèse	Maria Chamarro	Professeur, Université Paris 6
Co-directeur de thèse	Christophe Testelin	Chargé de recherche, INSP

Institut des NanoSciences de Paris-CNRS UMR 7588

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>2</b>
<b>1 Boîtes quantiques semi-conductrices</b>	<b>11</b>
1.1 Présentation . . . . .	12
1.1.1 Mode de croissance auto-organisée des boîtes InAs/GaAs . . . . .	13
1.1.2 Échantillons étudiés . . . . .	13
1.2 Structure électronique . . . . .	14
1.2.1 Structure de bandes du massif de GaAs . . . . .	15
1.2.2 Couche de mouillage, puits quantique . . . . .	19
1.2.3 Boîtes quantiques . . . . .	20
1.3 Interaction avec la lumière . . . . .	23
1.3.1 Règles de sélection optique . . . . .	23
1.3.2 Continuum d'absorption . . . . .	25
1.3.3 Structure fine de la paire électron-trou, interaction d'échange . . . . .	26
1.3.4 Boîte dopée à un trou . . . . .	28
1.4 Ralentissement de la relaxation du spin . . . . .	29
1.4.1 Matériaux massifs . . . . .	29
1.4.2 Boîtes quantiques . . . . .	31
<b>2 Expérience pompe-sonde résolue en temps</b>	<b>33</b>
2.1 Principe de l'expérience . . . . .	34
2.2 Dispositif expérimental . . . . .	35
2.2.1 Schéma du montage . . . . .	35
2.2.2 Détection synchrone du signal . . . . .	38
2.3 Description microscopique du signal mesuré . . . . .	40
2.3.1 Expression du champ total en fonction de l'état du système . . . . .	40
2.3.2 Signal de dichroïsme circulaire, différences des populations . . . . .	43
<b>3 Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs</b>	<b>47</b>
3.1 Origine, terme de contact et terme dipolaire . . . . .	48
3.1.1 Hamiltonien hyperfin . . . . .	48
3.1.2 Terme de contact, électron de conduction . . . . .	49

3.1.3	Un électron en interaction avec N noyaux . . . . .	51
3.2	Relaxation du spin de l'électron induite par l'interaction hyperfine . . . . .	51
3.2.1	Problématique . . . . .	52
3.2.2	Approche semi-classique sur un ensemble de boîtes . . . . .	52
3.2.3	Approche exacte sur une seule boîte . . . . .	57
3.2.4	Comparaison des deux modèles . . . . .	61
3.3	Couplage hyperfin entre un trou localisé et les noyaux . . . . .	63
3.3.1	États de valence mélangés . . . . .	63
3.3.2	Hamiltonien . . . . .	64
<b>4</b>	<b>Orientation optique du spin du trou résident</b>	<b>67</b>
4.1	Polarisation sous excitation résonnante . . . . .	68
4.1.1	Expérience de dichroïsme circulaire photo-induit résolue en temps . . . . .	68
4.1.2	Mécanisme de polarisation . . . . .	70
4.1.3	Relaxation de spin du trou par interaction hyperfine . . . . .	70
4.1.4	Modélisation de l'expérience de DCP . . . . .	73
4.1.5	Comparaison avec l'expérience . . . . .	79
4.2	Polarisation sous excitation non résonnante . . . . .	82
4.2.1	Expérience avec deux lasers synchronisés . . . . .	82
4.2.2	Modélisation . . . . .	88
4.2.3	Conclusion . . . . .	91
<b>5</b>	<b>Dynamique longue du spin résident</b>	<b>93</b>
5.1	Motivation . . . . .	94
5.2	Principe de l'expérience pompe-sonde résolue en fréquence . . . . .	95
5.2.1	Principe . . . . .	95
5.2.2	Analyse fréquentielle du signal . . . . .	97
5.3	Dynamique de spin du trou sans champ magnétique . . . . .	100
5.3.1	Dichroïsme photoinduit analysé en fréquence . . . . .	100
5.3.2	Temps d'initialisation du spin . . . . .	102
5.4	Relaxation de spin du trou en fonction du champ magnétique . . . . .	107
5.4.1	Expérience . . . . .	108
5.4.2	Interaction hyperfine "longue portée", inhomogénéité de la fonction d'onde . . . . .	108
5.4.3	Environnement électrostatique . . . . .	113
5.5	Relaxation de spin du trou en fonction de la température . . . . .	116
5.5.1	Relaxation du spin via l'interaction spin-phonon . . . . .	116
5.5.2	Expérience . . . . .	118
5.6	Conclusion . . . . .	120
<b>6</b>	<b>Polarisation dynamique nucléaire induite par le trou</b>	<b>121</b>

6.1	Introduction . . . . .	122
6.2	Mise en évidence expérimentale des effets nucléaires . . . . .	123
6.2.1	Dédoublément Zeeman de la luminescence sans champ magnétique appliqué . . . . .	124
6.2.2	Enjeux de l'étude des effets nucléaires en configuration pompe-sonde . . . . .	126
6.2.3	Effets des champs effectifs sur la polarisation de spin du porteur . . . . .	126
6.3	Déplacement de la polarisation sous excitation résonnante . . . . .	130
6.3.1	Expériences en configuration Faraday, modulation de la polarisation d'excitation . . . . .	130
6.3.2	Expériences en configuration Faraday sous excitation polarisée . . . . .	132
6.3.3	Interprétation : champ Overhauser ou champ Knight ? . . . . .	133
6.3.4	Conclusion partielle . . . . .	135
6.4	Origine de la polarisation des noyaux . . . . .	136
6.4.1	Déplacement Overhauser sous excitation non résonnante . . . . .	137
6.4.2	Sens de la polarisation nucléaire sous excitation résonnante . . . . .	139
6.4.3	Efficacité du processus de polarisation dynamique, excitation continue versus pulsée . . . . .	140
6.4.4	Limites de l'expérience . . . . .	141
6.5	Conclusion . . . . .	142
<b>7</b>	<b>Évolution cohérente du spin du trou</b>	<b>145</b>
7.1	Synchronisation des modes de précession, expérience à une impulsion . . . . .	146
7.1.1	Description du système . . . . .	146
7.1.2	Préparation du système dans un état cohérent . . . . .	147
7.1.3	Inhomogénéité du facteur de Landé . . . . .	149
7.1.4	Expérience . . . . .	150
7.1.5	Modélisation du signal de cohérence . . . . .	153
7.2	Expérience à deux impulsions, écho du signal de cohérence . . . . .	158
7.3	Conclusion et perspectives . . . . .	160
<b>8</b>	<b>Conclusion</b>	<b>163</b>
<b>A</b>	<b>Dynamique du système électron-noyaux en interaction hyperfine, méthode exacte</b>	<b>167</b>
<b>B</b>	<b>Reconstruction partielle de la dynamique temporelle</b>	<b>173</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>175</b>

# Remerciements

Le travail présenté dans les pages qui vont suivre n'aurait pu aboutir sans le concours de nombreuses personnes dont les conseils, l'aide et les compétences m'ont été précieux. J'ai mené ce travail de thèse à l'Institut des NanoSciences de Paris et je souhaite remercier Claudine Noguera et Bernard Perrin, qui ont assuré successivement la direction du laboratoire, de m'y avoir accueilli.

Je remercie les différents membres du jury pour avoir évalué ce travail de thèse. Lucien Besombes et Guillaume Cassabois pour avoir accepté d'en être les rapporteurs, Thierry Amant et Olivier Krebs qui ont participé en tant qu'examineurs, ainsi que Jérôme Tignon qui l'a présidé.

Je remercie chaleureusement mes deux directeurs de thèse, Maria Chamarro et Christophe Testelin. La confiance mutuelle que nous partageons aujourd'hui est le résultat d'un parcours de trois ans basé sur la curiosité, le travail et la sympathie. La qualité de leur encadrement et leur vastes compétences scientifiques m'ont permis d'avancer rapidement sur le chemin de la recherche et de comprendre bon nombre de résultats expérimentaux. Je tiens également à les remercier pour leur disponibilité et les moyens qu'ils ont mis en oeuvre pour que cette thèse, perturbée par un déménagement du laboratoire, se passe dans les meilleures conditions matérielles possible.

Dans la veine des personnes qui ont contribué singulièrement à cette thèse, je tiens à remercier Benoît Eble et Frédéric Bernardot.

Benoît, tu devrais m'être reconnaissant pour t'avoir laissé agresser mon sens musical pendant ces trois années mais pour l'heure c'est moi qui te remercie pour les nombreuses heures d'expérience partagées ensemble, ainsi que pour toutes les conversations où nous avons défait et refait le monde de la physique. Frédéric je te remercie pour ta sollicitude, tes conseils ainsi que tes subtiles remarques qui ont jalonné ces trois années de thèses.

Au cours de mon doctorat, j'ai pu également bénéficier du concours avisé des ingénieurs du laboratoire : Mathieu Bernard, Michel Menant, Silbé Majrab et Francis Breton. Merci à vous quatre pour vos compétences et votre gentillesse.

Je tiens également à exprimer ma sympathie envers les personnes avec qui j'ai partagé mon quotidien au laboratoire : Richard Hostein, Laura Thévenard, Valia Violotis, Roger Grousson, Jérémy Holcman, Catherine Gourdon, Florent Pérez, Bernard Jusserand, Laurent Legendre et Thierry Barisien.

C'est avec le visage fendu d'un grand sourire que je me rappelle les moments vécus durant

cette thèse avec les Bouvard et Pécuchet de la physique : Amaury et Sophie. A vous, mes comparses, un très grand merci.

Je n'oublie pas non plus mes amis de toujours : Romain, Thomas, Nicolas, Thibault et Michael, qui plus par amitié que par curiosité ont essayé de s'intéresser à mes histoires de spin durant ces trois années. Merci les frérots.

C'est bien pour mettre en relief mon immense gratitude que je terminerai en adressant mes remerciements à ma famille ainsi qu'à ma belle Annette.

Enfin, j'adresse ma plus profonde pensée à mon frère Samuel.



# Introduction

Les recherches dédiées à la physique des spins dans les semiconducteurs ont débuté il y a plus de trente ans, en particulier avec les travaux de G. Lampel sur le pompage optique dans le silicium. Celui-ci a ainsi réalisé les premières expériences d'orientation optique des spins électroniques. L'engouement actuel pour cette problématique repose sur l'idée d'utiliser le spin comme grandeur physique mise au service de l'information. Au même titre que le bit classique (0 ou 1) est obtenu au moyen d'une tension (0 ou 5V), on souhaiterait être capable de coder l'information sur l'état de spin "up"  $|\uparrow\rangle$  ou "down"  $|\downarrow\rangle$ . Par ailleurs, la possibilité de préparer un spin électronique dans une superposition cohérente d'états quantiques du type  $|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle$  (qualifié de bit quantique) constitue une perspective intéressante pour réaliser des opérations logiques inaccessibles en informatique classique. A condition néanmoins que le temps de cohérence puisse être suffisamment long.

L'étude de la dynamique de spin des électrons dans les semiconducteurs s'inscrit naturellement comme une étape préliminaire au développement de ces idées. De nombreuses études ont permis d'établir que le temps de relaxation de spin d'un électron dans un semiconducteur augmente avec le confinement de celui-ci dans l'espace. Les progrès réalisés ces dernières années dans le domaine de l'épitaxie d'hétérostructures rendent possible ce confinement. Ainsi, ces dernières années, l'intérêt scientifique s'est naturellement tourné vers les nanostructures où les porteurs sont localisés dans les trois directions de l'espace : les boîtes quantiques. Des travaux théoriques [1, 2, 3] et expérimentaux [4, 5, 6] ont montré que l'absence de collisions permet de ralentir la relaxation de spin, en supprimant certains mécanismes de relaxation actifs lorsque les porteurs sont libres de se déplacer dans l'espace.

Ainsi, le spin d'un électron piégé dans une boîte quantique constitue une observable bien protégée des mécanismes de relaxation fonctionnant dans les matériaux massifs, les puits quantiques et les fils quantiques [7] ; il est alors suffisamment isolé des sources de décohérence pour permettre l'observation des délicates superpositions entre les états "up" et "down". De plus, les boîtes quantiques apparaissent comme un système attractif, puisque contrairement à d'autres systèmes issus de la physique atomique ou de l'optique quantique, elles présentent l'intérêt d'être intégrables dans des dispositifs opto-électroniques solides. L'inscription et la manipulation optiques sont particulièrement bien adaptées à de tels systèmes. En effet, des manipulations optiques s'effectuant sur quelques picosecondes offrent la liberté d'envisager plusieurs opérations avant toute perte de cohérence .

Au cours des dernières années, le spin d'un électron confiné dans une boîte quantique a suscité un très grand nombre d'études. Des études théoriques et expérimentales ont ainsi mis en évidence que le mécanisme ultime qui régit la relaxation et la décohérence du spin de

l'électron, est l'interaction hyperfine entre le spin électronique et le bain de spins nucléaires de la boîte [3, 8, 9]. Des études de photoluminescence de boîtes quantiques dopées en trous ont ainsi montré, en accord avec la théorie, que cette relaxation du spin électronique est partielle et caractérisée par un temps de l'ordre de la nanoseconde dans des boîtes auto-assemblées d'InAs [10, 11].

L'interaction hyperfine entre le spin électronique et ceux des noyaux est une interaction de contact, qui dépend de la valeur de la fonction de Bloch (de symétrie  $s$  pour un état de conduction) à l'endroit des noyaux considérés. Pour le trou dont la fonction de Bloch est de symétrie  $p$ , il a longtemps été considéré que l'interaction hyperfine était négligeable. Dans les matériaux III-V, dont tous les isotopes sont porteurs d'un spin nucléaire non nul, la perspective d'utiliser le spin du trou confiné dans une boîte quantique comme qubit a suscité une grande attention. En vue d'étudier et de manipuler le spin du trou, une première étape a été de réussir à le polariser. B. Gerardot et coll., en 2008 [12], sous excitation continue, et l'équipe de l'INSP, en 2009 [13], sous excitation pulsée, ont montré qu'une polarisation efficace du trou était réalisable optiquement. Dans le même temps, les travaux menés à l'INSP ont mis en évidence l'existence d'une interaction hyperfine entre le trou et les noyaux non négligeable, seulement d'un ordre de grandeur plus faible que pour l'électron. Les travaux théoriques menés dans l'équipe de D. Loss à Bâle ou à l'INSP, ont clairement expliqué l'origine et l'intensité de cette interaction trou-noyaux. Les travaux de notre équipe ont en particulier montré le rôle joué par le mélange trou lourd-trou léger, et la possibilité d'inhiber ce couplage par un champ modéré d'une dizaine de mT. De plus, l'étude de la dynamique de spin du trou a mis en évidence une relaxation partielle de la polarisation du trou, similaire à celle observée pour un électron, mais sur une échelle de temps de l'ordre de la dizaine de nanosecondes. C'est dans ce contexte que cette thèse a été entreprise, avec comme objectif d'étudier les conséquences induites par la présence de l'interaction hyperfine trou-noyaux dans les boîtes quantiques dopées  $p$ .

La dynamique d'un spin soumis à une interaction hyperfine est extrêmement complexe et multi-échelle [3, 9, 14, 15]. L'observation d'une relaxation partielle aux temps courts ( $\simeq 10$  ns) ayant été établie, s'est alors posée la question de la relaxation du spin à une échelle de temps beaucoup plus longue ( $\sim 1 \mu\text{s}$ ), qui pourrait être associée à la dynamique des spins nucléaires sous l'effet du spin du trou. Dans ce but, nous avons développé une approche expérimentale originale, fonctionnant dans le domaine fréquentiel, afin d'étendre de quatre ordres de grandeur la gamme temporelle explorée.

Les travaux sur l'électron ont montré qu'il était possible de polariser son spin sous excitation optique résonnante ou non résonnante. Cette dernière configuration n'ayant pas été explorée pour le trou, la démonstration de sa polarisation sous un pompage optique hors résonance restait à faire.

L'existence d'un couplage hyperfin tridimensionnel trou-noyaux ayant été établie, s'est alors posée la question de la possibilité de polariser les spins nucléaires via cette interaction. En effet, le couplage hyperfin est une interaction réciproque, où porteur et noyaux peuvent

se communiquer leurs polarisations respectives. C'est ainsi qu'une polarisation efficace des noyaux a été largement étudiée dans des boîtes contenant un électron polarisé [16, 17, 18]. Un enjeu de ce travail était donc de tester ce concept : l'injection optique d'un trou polarisé en spin, permet-elle d'orienter les spins nucléaires ?

Enfin, les derniers résultats de ce mémoire portent sur la manipulation cohérente du spin du trou. En effet, le trou étant mieux protégé du couplage avec l'environnement nucléaire que l'électron, son spin devrait présenter un signal de cohérence plus robuste. A cette fin, nous avons mis en œuvre une expérience permettant la sélection fréquentielle des spins de trou sur un ensemble de boîtes.

Ce manuscrit est organisé autour de sept chapitres :

Le premier chapitre est consacré à la présentation générale des boîtes quantiques. La notion de confinement est abordée à travers la présentation de la structure électronique dans des systèmes de dimensions décroissantes.

Dans le chapitre 2, une description générale du dispositif pompe-sonde en configuration de dichroïsme circulaire photoinduit est donnée. Nous établissons également le lien entre la mesure du dichroïsme circulaire et l'état microscopique des boîtes quantiques.

L'objectif du chapitre 3 est d'introduire les éléments et le formalisme nécessaires à la description de l'interaction hyperfine électron-noyaux et trou-noyaux, dans les boîtes quantiques. Une attention particulière est accordée au mécanisme de relaxation de spin induit par l'interaction hyperfine.

Le chapitre 4 présente les résultats des expériences de dichroïsme circulaire résolu en temps, sur un échantillon de boîtes quantiques dopées p. La polarisation de spin des boîtes quantiques est étudiée sous excitation résonnante et non résonnante, à l'aide d'une expérience pompe-sonde à deux couleurs.

Dans le chapitre 5, nous présentons des études du temps de relaxation de spin du trou résident, sur une dynamique temporelle microseconde, en fonction du champ magnétique et de la température. Ces études sont rendues possibles par une méthode expérimentale fonctionnant dans le domaine fréquentiel, que nous présentons.

Le chapitre 6 est consacré au phénomène de polarisation dynamique nucléaire. La polarisation de spin du trou résident est étudiée, sous excitation continuellement polarisée, dans une gamme de très faibles champs magnétiques, et ce, sous excitation résonnante et non résonnante.

L'objet du chapitre 7 porte sur le signal de cohérence de spin du trou en fonction d'un champ magnétique appliqué en configuration Voigt. Nous présentons une expérience basée sur un protocole d'excitation optique à deux impulsions, permettant le contrôle de la cohérence de spin du trou résident.

# Chapitre 1

## Boîtes quantiques semi-conductrices

### Sommaire

---

1.1	Présentation . . . . .	<b>12</b>
1.1.1	Mode de croissance auto-organisée des boîtes InAs/GaAs . . . . .	13
1.1.2	Échantillons étudiés . . . . .	13
1.2	Structure électronique . . . . .	<b>14</b>
1.2.1	Structure de bandes du massif de GaAs . . . . .	15
1.2.2	Couche de mouillage, puits quantique . . . . .	19
1.2.3	Boîtes quantiques . . . . .	20
1.3	Interaction avec la lumière . . . . .	<b>23</b>
1.3.1	Règles de sélection optique . . . . .	23
1.3.2	Continuum d'absorption . . . . .	25
1.3.3	Structure fine de la paire électron-trou, interaction d'échange . . . . .	26
1.3.4	Boîte dopée à un trou . . . . .	28
1.4	Ralentissement de la relaxation du spin . . . . .	<b>29</b>
1.4.1	Matériaux massifs . . . . .	29
1.4.2	Boîtes quantiques . . . . .	31

---

L'objectif de ce premier chapitre est d'introduire les notions générales et nécessaires à la compréhension des études menées au cours de ce travail de thèse et rapportées dans ce manuscrit. À cette fin nous commençons par une présentation du système étudié : mode de fabrication des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, propriétés électroniques et couplage à la lumière. Nous discutons ensuite, qualitativement, des conséquences du confinement tri-dimensionnel des porteurs du point de vue de la relaxation de spin.

## 1.1 Présentation

Les boîtes quantiques sont des structures de taille nanométrique, qui contiennent entre  $10^3$  et  $10^6$  atomes, où les porteurs de charge sont confinés dans les trois directions de l'espace. Sous cette appellation, on trouve différentes réalisations techniques :

1. Les boîtes quantiques obtenues à partir d'un gaz d'électrons ou de trous confinés dans un puits quantique, et dont le confinement latéral est dû à l'application d'un champ électrique. Elles sont couramment étudiées dans des expériences de transport et de détection de charge. Leurs dimensions latérales sont fixées par les processus de lithographie des électrodes qui servent à leur définition (100 nm).
2. Les boîtes quantiques qui apparaissent de façon spontanée pendant la fabrication de puits quantiques, et qui sont le résultat de fluctuations d'épaisseur de l'ordre de la mono-couche. Leur taille latérale typique est comprise entre 10 et 100 nm, elles présentent un faible confinement des porteurs ( $\simeq 10$  meV).
3. Les boîtes quantiques obtenues par voie chimique, appelées également nanocristaux, pour lesquelles une forme sphérique est facilement obtenue, et dont le diamètre peut être compris entre 2 et 10 nm. Les nanocristaux offrent la possibilité de bien confiner les porteurs, car ils peuvent être inclus dans des matrices isolantes. Cependant, l'interface matrice-nanocristal peut être le siège de défauts, jouant un rôle important dans leurs propriétés électroniques.
4. Les boîtes quantiques obtenues à partir d'une croissance auto-assemblée, qui privilégie l'arrangement en îlots. Il existe deux régimes de croissance :
  - L'épitaxie par gouttelettes qui permet la formation de boîtes dans des systèmes cristallins en accord ou en faible désaccord de maille.
  - Le régime de Stranski-Krastanov, procédé basé sur les contraintes provenant du désaccord de maille entre la matrice cristalline et la couche déposée. La dimension latérale de ces boîtes est de l'ordre de 10 à 20 nm, la hauteur typique est de quelques nanomètres, et le confinement de plusieurs dizaines à quelques centaines de meV. Les boîtes d'InAs/GaAs étudiées au cours de cette thèse proviennent de ce type de croissance. Nous en détaillons le procédé dans la section suivante.

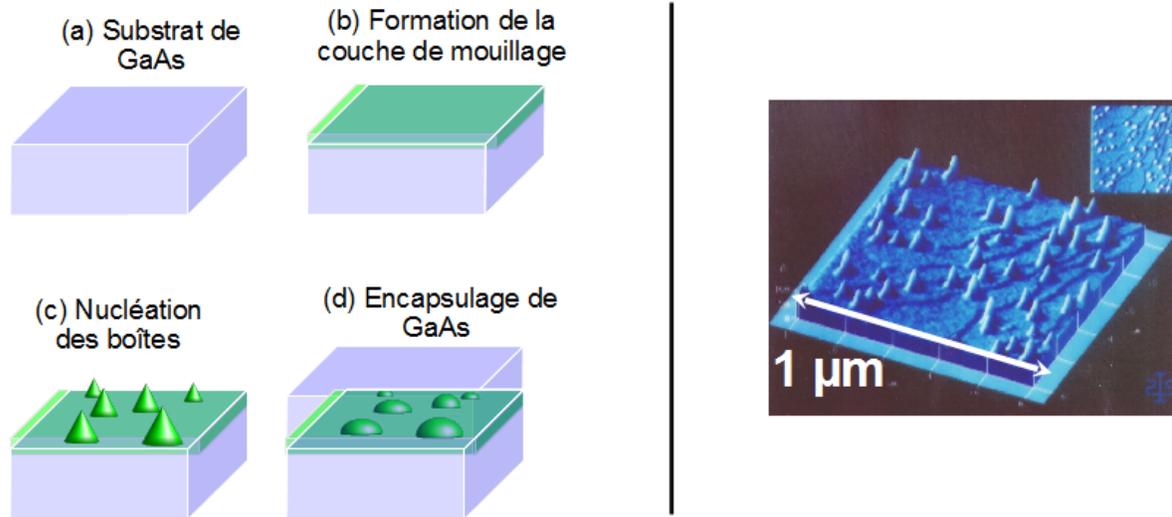


FIGURE 1.1: (a,b,c,d) Croissance de boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs sur GaAs en régime Stranski-Krastanov. Image AFM d'un plan de boîtes obtenue par J.M. Moison [20].

### 1.1.1 Mode de croissance auto-organisée des boîtes InAs/GaAs

Les boîtes quantiques d'InAs/GaAs sont obtenues par épitaxie par jets moléculaires dans le régime de croissance de Stranski-Krastanov [19]. La formation des boîtes quantiques se fait en plusieurs étapes :

- Sur un substrat de GaAs épitaxié, afin d'obtenir un réseau cristallin présentant un minimum de défauts, on dépose un alliage d'InAs. Dans un premier temps, les atomes d'Arsenic et d'Indium se répartissent de façon homogène sur la surface de l'échantillon ; il se forme alors une couche 2D d'InAs (figure 1.1), appelée couche de mouillage.
- Cette couche est fortement contrainte car les deux matériaux ont un désaccord de paramètre de maille de 7%. Au-delà d'une épaisseur moyenne de 1.7 monocouches, les contraintes accumulées dans la couche d'InAs relaxent localement en formant des structures qui minimisent l'énergie élastique. Ces structures sont des îlots de forme conique : ce sont les boîtes.
- Pour finir on fait croître à nouveau du GaAs. Lors de ce recouvrement les boîtes s'aplatissent.

On parle de boîtes auto-assemblées car leur formation est due à la figure d'équilibre prise spontanément par un dépôt d'InAs sur GaAs. Ajoutons que ce mode de croissance permet de créer des plans de boîtes, de faible densité surfacique utilisés pour les études sur boîte unique, comme des plans de forte densité pour les applications laser.

### 1.1.2 Échantillons étudiés

Les études qui sont présentées dans ce manuscrit sont menées sur un ensemble de boîtes quantiques dopées p. Ces échantillons ont été réalisés par A. Lemaître et A. Miard au

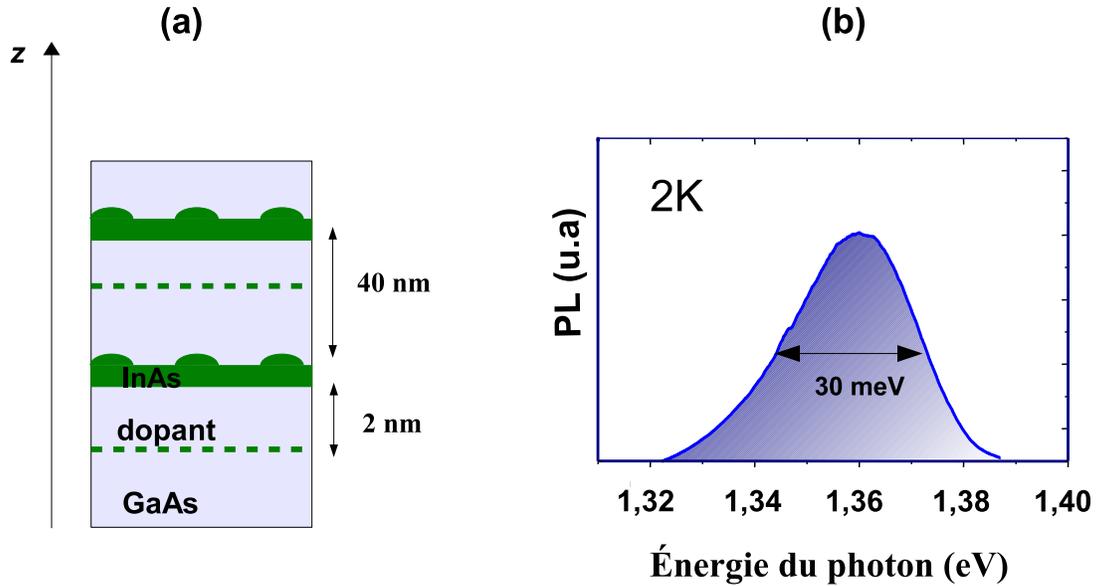


FIGURE 1.2: (a) Structure de l'échantillon étudié. (b) Spectre de luminescence de l'échantillon étudié dopé p à  $2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  (74K31), réalisé avec une énergie d'excitation de 1.44 eV à une température de 2K.

Laboratoire de Photonique et Nanostructures. Ils sont constitués de 30 plans de boîtes quantiques, avec une densité de boîtes par plan d'environ  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$ .

La méthode de dopage chimique repose, comme indiqué sur la figure 1.2, sur l'utilisation d'une couche monoatomique de carbone que l'on dépose à environ 2 nm de chacun des plans de boîtes. Une fois déposé, le carbone va se substituer à l'arsenic et laisser un trou qui va diffuser et finir par se retrouver piégé dans la boîte, aboutissant ainsi à un dopage de type p. Cependant, la distribution statistique des dopants ne permet pas de maîtriser exactement le nombre de porteurs par boîte. Dans certaines nous aurons plus d'une charge et dans d'autres aucune. Néanmoins, si la concentration surfacique des dopants est proche de celle des boîtes, on peut raisonnablement espérer avoir un trou par boîte en moyenne. Au cours de cette thèse nous nous sommes particulièrement concentrés sur l'échantillon fortement dopé à  $2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  dont la référence est 74 K31. Cet échantillon présente un spectre de luminescence, à 2K, centré sur une énergie de 1.36 eV avec une largeur inhomogène de 30 meV.

## 1.2 Structure électronique

Afin de mieux cerner les propriétés particulières qui découlent du confinement tridimensionnel dans les boîtes quantiques, on commence par décrire la structure de bandes du semi-conducteur massif, puis on regarde comment évolue cette structure lorsque la dimension des objets passe progressivement de trois à zéro. Nous commençons donc par présenter

la structure électronique dans un massif, ensuite dans un puit quantique et en enfin dans une boîte quantique.

### 1.2.1 Structure de bandes du massif de GaAs

Dans un semiconducteur massif, considéré comme infini, l'énergie potentielle de l'électron est périodique dans l'espace. Cette périodicité est l'origine de la structure de bandes du spectre électronique. Le théorème de Bloch permet de décrire, en représentation  $|\vec{r}\rangle$ , les états électroniques de la manière suivante :

$$\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\cdot\vec{r})u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.1)$$

où  $n$  est l'indice de bande,  $\vec{k}$  le quasi-vecteur d'onde représentant le nombre quantique translationnel,  $u_{n,\vec{k}}(\vec{r})$  est une fonction périodique dite "de Bloch" avec la même période, dans l'espace réel, que le réseau cristallin. L'information concernant la nature et l'arrangement chimique du cristal est contenue dans cette fonction.

La structure de bandes de l'énergie est donnée par la résolution de l'équation de Schrödinger :

$$H\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = \left[\frac{p^2}{2m_0} + V_c(\vec{r})\right]\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}}\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.2)$$

où  $m_0$  est la masse de l'électron libre, et  $V_c$  le potentiel périodique du cristal. Avec  $p^2\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = (\vec{p} + \hbar\vec{k})^2u_{n,\vec{k}}(\vec{r})$ , l'hamiltonien (1.2) se décompose en la somme de deux termes exprimés sur les fonctions  $u_{n,\vec{k}}$  :

$$Hu_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = (H_0 + H')u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{n,\vec{k}}u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.3)$$

$$\text{avec } H_0 = \frac{p^2}{2m_0} + V_c(\vec{r}) \quad \text{et} \quad H' = \frac{\hbar^2k^2}{2m_0} + \frac{\hbar}{m_0}\vec{k}\cdot\vec{p} \quad (1.4)$$

#### Solution en $k = 0$

Nous ne considérons ici que les bandes participant aux transitions optiques de plus basse énergie. On réduit la base de travail à une bande de conduction et trois de valence.

En  $k = 0$ ,  $H = H_0$ , l'équation (1.3) devient :

$$Hu_{n,0}(\vec{r}) = H_0u_{n,0}(\vec{r}) = E_{n,0}u_{n,0}(\vec{r}) \quad (1.5)$$

La symétrie des états propres de  $H_0$  peut être déterminée par la théorie des groupes [21]. Dans les semiconducteurs  $III - V$  de structure blende de zinc, les états électroniques  $u_{n,0}$  du centre de zone se transforment comme les orbitales atomiques  $p_x$ ,  $p_y$ ,  $p_z$ ,  $s$ , dans les opérations de symétrie du cristal. Autrement dit, les états de conduction trouvent leur origine dans les liaisons anti-liantes de type  $s$ , ceux de valence proviennent des liaisons

Fonctions propres $u_i$	Bande	Notations $ J, J_z\rangle$	Énergies propres en ( $k=0$ )
$u_1 =  S, \uparrow\rangle$ $u_2 =  S, \downarrow\rangle$	$\Gamma_6$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_6 = E_{hh} + E_g$
$u_5 = \frac{1}{\sqrt{2}} X + iY, \uparrow\rangle$ $u_6 = \frac{1}{\sqrt{2}} X - iY, \downarrow\rangle$	$\Gamma_8^{hh}$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$ $ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	$E_8^{hh} = E_8$
$u_3 = \frac{1}{\sqrt{6}} X + iY, \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \uparrow\rangle$ $u_4 = \frac{1}{\sqrt{6}} X - iY, \uparrow\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \downarrow\rangle$	$\Gamma_8^{lh}$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_8^{lh} = E_8$
$u_7 = \frac{1}{\sqrt{3}}[ X + iY, \downarrow\rangle +  Z, \uparrow\rangle]$ $u_8 = \frac{1}{\sqrt{3}}[ X - iY, \uparrow\rangle -  Z, \downarrow\rangle]$	$\Gamma_7$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ $ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$E_7 = E_{hh} - \Delta_{so}$

 TABLE 1.1: Fonctions propres et énergies propres des extrema de bandes ( $k = 0$ ).

liantes de type p.  $H_0$  n'étant pas un hamiltonien prenant en compte le spin, les fonctions  $u_{n,0}$  sont dégénérées deux fois :

$$\begin{aligned} & \{|S \uparrow(\downarrow)\rangle\} \text{ pour les états de conduction} \\ & \{|X \uparrow(\downarrow)\rangle, |Y \uparrow(\downarrow)\rangle, |Z \uparrow(\downarrow)\rangle\} \text{ pour les états de valence} \end{aligned}$$

Les états de conduction et de valence sont séparés, en  $k = 0$ , d'une énergie  $E_g$  égale à environ 1,45 eV dans le GaAs et 0.4 eV dans l'InAs.

La prise en compte de l'interaction spin-orbite modifie les états propres  $u_{n,0}$ . En effet, le couplage entre le moment orbital  $\vec{L}$  de l'électron et son spin :  $H_{so} = \frac{\hbar}{2m_0^2c^2}(\vec{S} \times \vec{\nabla}V) \cdot \vec{p}$ , entraîne que  $H_0 + H_{so}$  ne commute plus avec l'opérateur de spin de l'électron. En revanche, il commute avec le moment cinétique total  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ ; il est donc commode de décrire les nouveaux états propres dans la base  $|J, J_z\rangle$ , où  $J$  est le nombre quantique relatif au moment total et  $J_z$  sa projection suivant  $z$ .

Le couplage spin-orbite laisse invariant les états de conduction, où le moment orbital est nul. En revanche, pour les états de valence il lève partiellement la dégénérescence au centre de zone : les états du doublet  $J = 1/2$  sont déplacés vers les basses énergies d'une quantité  $\Delta_{so}$ , qui est à hauteur de 0.35 eV pour le GaAs et 0.4 eV pour l'InAs. La transition de plus basse énergie concerne donc la promotion d'un électron de valence des niveaux dégénérés du quadruplet  $J = 3/2$  vers les niveaux de conduction  $J = 1/2$ .

Les valeurs propres  $E_{n,0}$  de  $H_0$  sont déterminées expérimentalement. Elles correspondent aux extrema des bandes d'énergie considérées (figure 1.3).

Les expressions des fonctions  $u_{n,0}$  à partir des états "atomiques" sont reportées dans le tableau 1.1.

### Dispersion des bandes ( $\vec{k} \neq 0$ ), théorie $\vec{k} \cdot \vec{p}$

Pour obtenir la structure de bandes du matériau, il faut résoudre l'équation (1.3) avec  $\vec{k} \neq 0$ . Dans les semi-conducteurs à gap direct (InAs, GaAs), la description des propriétés

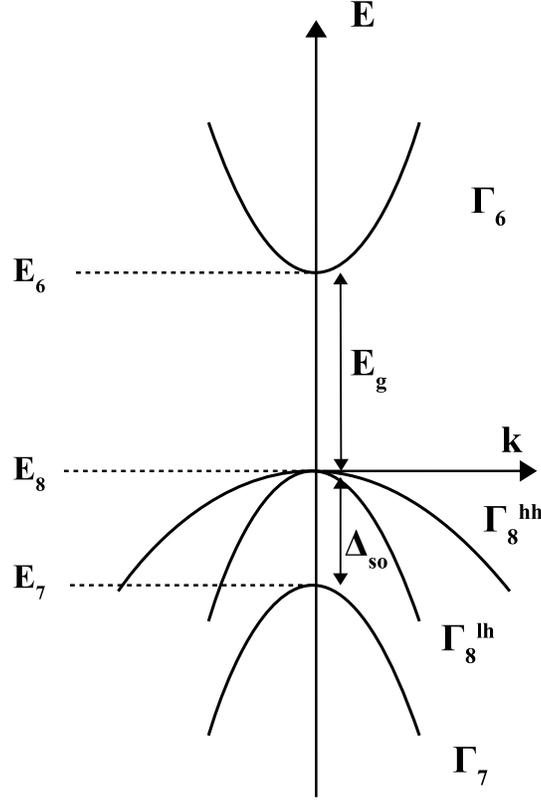


FIGURE 1.3: Structure de bandes des électrons et des trous, dans un semiconducteur massif de type blende de zinc, au voisinage de  $k=0$ .

optiques ne nécessite que la connaissance des états électroniques au voisinage de  $k = 0$ . La théorie  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , introduite historiquement par J. Bardeen et F. Seitz [22, 23], est une des méthodes pour y parvenir. Il s'agit d'une technique de calcul semi-empirique qui introduit, dans le calcul théorique, des valeurs pouvant provenir de l'expérience. Elle repose sur le traitement en perturbation du terme  $H'$  sur la base des fonctions  $u_{n,0}$  :

$$u_{n,\vec{k}} = \sum_p C_p(\vec{k}) u_{p,0} \quad (1.6)$$

Au voisinage du centre de la première zone de Brillouin, le développement des états propres au premier ordre, et de l'énergie au second, conduit à :

$$u_{n,\vec{k}} = u_{n,0} + \frac{\hbar}{m_0} \sum_{p \neq n} \frac{\langle u_{n,0} | \vec{k} \cdot \vec{p} | u_{p,0} \rangle}{E_{n,0} - E_{p,0}} u_{p,0} \quad (1.7)$$

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,0} + \frac{\hbar k^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{p \neq n} \frac{|\langle u_{n,0} | \vec{k} \cdot \vec{p} | u_{p,0} \rangle|^2}{E_{n,0} - E_{p,0}} \quad (1.8)$$

particule	masse effective
électron de conduction	$0.067m_0$
trous lourd	$-0.34m_0$
trous léger	$-0.086m_0$

TABLE 1.2: Masses effectives des particules, suivant l'axe de quantification  $z$ , dans le massif de GaAs;  $m_0$  est la masse de l'électron libre [21].

L'expression (1.8) s'écrit formellement de la manière suivante :

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,0} + \frac{\hbar k^2}{2m_n} \quad (1.9)$$

ce qui permet d'introduire la masse effective  $m_n$  des particules constituant la bande  $n$ , et de justifier le comportement parabolique des bandes d'énergie au voisinage du centre de zone (figure 1.3). La masse effective  $m_n$  est le reflet de la perturbation générée par les bandes  $p \neq n$  sur la bande  $n$ , elle traduit la courbure des bandes. De manière générale, la masse effective n'est pas un scalaire mais un tenseur de rang 2. Les valeurs des masses effectives dans le GaAs sont récapitulées dans le tableau 1.2.

Précisons que la prise en compte de l'interaction spin-orbite se traduit en remplaçant le terme  $\vec{p} \rightarrow (\vec{p} + \frac{\hbar}{2m_0^2 c^2} (\vec{S} \times \vec{\nabla}))$  dans les expressions (1.8).

Cette description dans le modèle "une bande non dégénérée" est une première approximation qui permet de justifier le comportement général du diagramme de dispersion, et d'introduire des notions essentielles comme la masse effective. Le comportement des bandes de valence n'est pas correctement décrit à ce stade, notamment au niveau de la courbure de la bande des trous légers qui fait intervenir des bandes d'énergies supérieures (particulièrement lorsque l'on s'écarte du centre de zone).

J. M. Luttinger, dans son article de référence de 1956 [24], obtient, grâce à la théorie des groupes, une description précise de la structure de la bande  $\Gamma_8$  au voisinage du centre de zone. Dans la base  $(u_5, u_4, u_3, u_6)$ , le hamiltonien de valence trous lourds/trous légers s'écrit :

$$\begin{bmatrix} P+Q & R & -S & 0 \\ R^* & P-Q & 0 & S \\ -S^* & 0 & P-Q & R \\ 0 & S^* & R^* & P+Q \end{bmatrix} \quad (1.10)$$

où  $P$ ,  $Q$ ,  $R$  et  $S$  dépendent des composantes du nombre quantique translationnel  $\vec{k}$  et des paramètres dit de Luttinger, dont la correspondance avec les paramètres de la théorie  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  se trouvent dans les références [21, 25]. Cet hamiltonien traduit que les états propres de valence, participant à la transition de plus basse énergie, sont des mélanges entre les états de trous lourds et légers. Bien que le confinement et les contraintes modifient la description des niveaux de valence dans les puits quantiques et les boîtes quantiques, ce mélange lourd-

léger est, comme nous le verrons plus tard, à l'origine de la relaxation de spin du trou dans les hétérostructures.

### 1.2.2 Couche de mouillage, puits quantique

Dans une hétéro-structure, le potentiel électronique subit une discontinuité à l'interface entre deux matériaux d'énergies de bande interdite différentes. Les porteurs piégés par une différence de potentiel trop importante ne peuvent se déplacer librement. Dans les directions du confinement, leurs états d'énergie deviennent quantifiés.

Dans ce type de structure, les états électroniques sont généralement décrits dans l'approximation de la fonction enveloppe. Cette approximation consiste à découpler le potentiel et les fonctions d'onde électroniques sur deux échelles spatiales : l'échelle atomique sur laquelle varie le potentiel électronique du cristal et une échelle plus "grande", caractéristique de la longueur du confinement électronique.

La couche de mouillage est un puits quantique très mince, confiné ici dans la direction z. Les états électroniques se décrivent, en représentation  $|\vec{r}\rangle$ , dans la base d'états  $\{\Phi_p(\vec{r})u_{p,0}(\vec{r})\}$  :

$$\psi_{n,\vec{k}_\perp}(\vec{r}) = \sum_p \exp(i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}) \Phi_p(\vec{r}) u_{p,0}(\vec{r}) \quad (1.11)$$

où les  $u_{p,0}$  sont les fonctions de Bloch du centre de zone, les  $\Phi_p$  sont les fonctions enveloppes lentement variables à l'échelle de la cellule élémentaire, et  $\vec{k}_\perp = (k_x, k_y)$  sont les nombres quantiques translationnels dans les directions transverses au confinement. Précisons que dans le cas précédent, d'une structure équivalente à un puits d'épaisseur infinie,  $\Phi_p(\vec{r})$  correspond à la fonction  $\exp(ik_z r_z)$ .

#### Confinement

Dans l'approximation du puits de potentiel de largeur  $L_z$  et de barrières infinies des deux côtés la relation de dispersion s'écrit, dans l'approximation "une bande", de la manière suivante :

$$E_n(\vec{k}_\perp) = E_{n,0} + E_{n_z} + \frac{\hbar^2(\vec{k}_\perp)^2}{2m_n^{x,y}} \quad (1.12)$$

où  $m_n^{x,y}$  est la masse effective dans le plan  $(x, y)$  de la particule de la bande n, et  $E_{n_z}$  l'énergie de confinement donnée par :

$$E_{n_z} = \frac{\hbar^2 \pi^2 n_z^2}{2m_n^z L_z^2} \quad (1.13)$$

où  $n_z$  est un nombre quantique lié au confinement. L'énergie de confinement dépend de la masse effective des particules. La masse effective du trou lourd suivant z étant quatre fois plus élevée que celle du trou léger (cf. tableau 1.2), le confinement entraîne une levée de dégénérescence entre ces deux états d'énergies. La transition optique de plus basse énergie est entre la bande  $\Gamma_8^{hh}$  de trous lourds et la bande de conduction  $\Gamma_6$ .

Ce point est fondamental, car sans cette levée de dégénérescence, l'absorption d'un photon polarisé circulairement, par exemple  $\sigma^+$ , excite les transitions :

$$\Gamma_8^{hh}|J_z = -3/2\rangle \rightarrow \Gamma_6|S_z = -1/2\rangle \quad \text{et} \quad \Gamma_8^{lh}|J_z = -1/2\rangle \rightarrow \Gamma_6|S_z = +1/2\rangle$$

L'orientation optique dans un massif est uniquement rendue possible à cause de la différence de force d'oscillateur de ces deux transitions. En revanche, la levée de dégénérescence permet d'atteindre une efficacité théorique de 100% pour l'orientation optique. En effet, l'absorption d'un photon  $\sigma^+$  ne crée alors que des électrons de projection  $S_z = -1/2$  et des trous de moment cinétique total  $J_z = +3/2$ .

### Contraintes

Dans la couche de mouillage, l'effet des contraintes s'ajoute au confinement pour lever la dégénérescence de la bande  $\Gamma_8$ . Dans l'approximation où l'on suppose que le cristal d'InAs est comprimé de manière identique dans le plan  $(x, y)$  et étiré selon l'axe de croissance  $z$ , le tenseur des déformations<sup>1</sup>  $\epsilon$  admet alors comme seuls éléments non nul les termes bi\_axiaux  $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$  et  $\epsilon_{zz}$ . A l'hamiltonien de Luttinger précédent (1.10) s'ajoute l'hamiltonien de Bir-Pikus, qui s'écrit en négligeant l'interaction spin-orbite, dans la base  $(u_5, u_4, u_3, u_6)$ , de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} a\varepsilon + \frac{1}{2}b(\varepsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a\varepsilon - \frac{1}{2}b(\varepsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & a\varepsilon - \frac{1}{2}b(\varepsilon - 3\epsilon_{zz}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & a\varepsilon + \frac{1}{2}b(\varepsilon - 3\epsilon_{zz}) \end{bmatrix} \quad (1.14)$$

où  $\varepsilon$  est la trace du tenseur  $\epsilon$ , et  $a$  et  $b$  sont les potentiels de déformation de la bande de valence. Les valeurs propres différentes, entres les états lourds et légers de l'hamiltonien, rendent bien compte d'une levée de dégénérescence supplémentaire. Précisons que, la déformation étant anisotrope ( $\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{zz}$ ), la masse effective des trous l'est également (la symétrie du cristal à travers les paramètres de Luttinger participe également à l'anisotropie des masses effectives).

### 1.2.3 Boîtes quantiques

La description de la structure électronique d'une boîte nécessite de considérer la taille, la forme, la composition ainsi que les contraintes qui s'exercent. Ces propriétés ne sont pas complètement contrôlées au moment de la croissance ni même connues avec précision par la suite. Cependant, sous la gouverne d'hypothèses raisonnables, on peut établir une description générale qui rend compte des effets majeurs observés dans les boîtes quantiques.

Dans une boîte quantique, les porteurs sont confinés dans les trois directions de l'espace.

---

1. Précisons qu'il existe, dans le cas de déformation élastique, une relation univoque entre le tenseur des déformation  $\epsilon$  et le tenseur des contraintes  $\sigma$ .

Ce confinement est à l'origine du spectre discret des états électroniques liés à la boîte quantique, qui apparaît en dessous du continuum à deux dimensions des états de la couche de mouillage (figure 1.4). En conséquence, les composantes du vecteurs d'onde  $\vec{k}$  ne sont plus des bons nombres quantiques.

Nous ne considérons ici que les niveaux hérités de la bande de trous lourds et la bande de conduction. Dans le modèle à une bande, la fonction d'onde électronique s'exprime de la manière suivante :

$$\psi(\vec{r}) = \Phi(\vec{r})u_{n,0}(\vec{r}) \quad (1.15)$$

où, comme précédemment,  $\Phi(\vec{r})$  est la fonction enveloppe et  $u_{n,0}(\vec{r})$  la fonction de Bloch définie en centre de zone. Précisons que, dans un plan de boîtes quantiques, la distance moyenne entre les boîtes est bien supérieure aux dimensions latérales de celles-ci, on peut donc considérer chaque boîte comme étant isolée. Dans ces conditions, le hamiltonien dans l'approche de masse effective se réduit à :

$$H = \frac{p^2}{2m^*} + V_{bq}$$

où  $V_{bq}$  est le potentiel de confinement de la boîte quantique. La technique consiste, en connaissant  $u_{n,0}$  et  $V_{bq}$ , à déterminer la fonction enveloppe  $\Phi$ . L'équation aux valeurs propres de  $H$  fournit l'équation suivante pour la fonction enveloppe :

$$\left(\frac{p^2}{2m^*} + V_{bq}\right)\Phi(\vec{r}) = E\Phi(\vec{r}) \quad (1.16)$$

Précisons que la relaxation des contraintes de la couche de mouillage, conduisant à la formation des boîtes, est partielle et anisotrope. De ce fait, les boîtes quantiques héritent des contraintes de la couche de mouillage avec un degré d'anisotropie supplémentaire.

On considère généralement les boîtes, en première approximation, comme des lentilles aplaties possédant la symétrie de révolution autour de l'axe de croissance  $z$ . L'hamiltonien régissant le mouvement du porteur dans la boîte commute alors avec l'opérateur  $L_z$ . Il est donc commode de choisir des états propres communs à  $H$  et  $L_z$ . En adoptant les notations atomiques usuelles, les états enveloppes sont spécifiés par le nombre quantique principal et par la projection du moment cinétique suivant  $z$ ,  $l_z$ . Les valeurs propres de  $l_z$ , 0 et  $\pm 1$ , désignent les états de symétrie s et p respectivement.

Une des méthodes pour obtenir les états liés dans la boîte quantique est décrite dans la référence [26]. Les auteurs utilisent l'approche variationnelle dans l'hypothèse où la masse effective est indépendante du matériau (In, As, Ga), où la fonction enveloppe est séparable suivant l'axe de croissance et le plan transverse ( $x, y$ ). La fonction enveloppe est alors :

- suivant l'axe de croissance, un état propre d'un puits quantique effectif de même épaisseur que l'ensemble boîte et couche de mouillage ;
- dans le plan, une fonction variationnelle de type exponentielle décroissante.

La comparaison, dans ce même article, avec une méthode numérique exacte, atteste que l'approximation des fonctions enveloppes séparables décrit très bien les états liés de la boîte

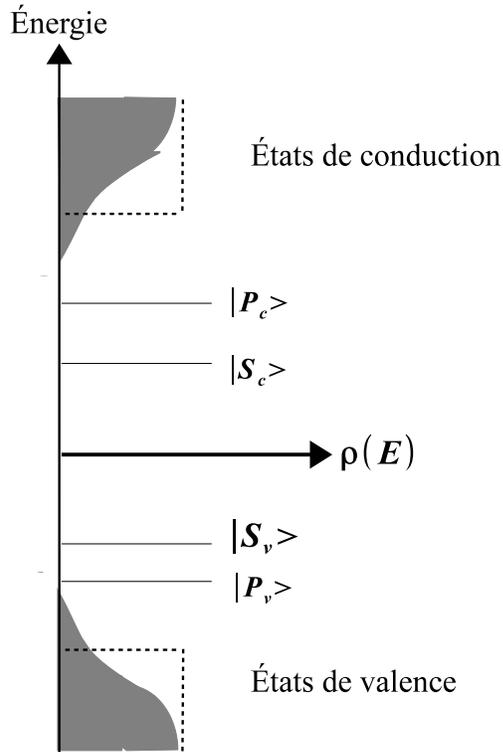


FIGURE 1.4: *Densité d'états typique pour une boîte quantique de symétrie cylindrique. Les zones pleines représentent le continuum des états de la couche de mouillage. En pointillé est représenté le profil de densité d'états d'un puits quantique parfait.*

quantique.

Le nombre d'états liés dans la boîte quantique est restreint comme le montre le schéma 1.4 où sont représentés typiquement les états s et p. La symétrie des fonctions enveloppes conduit à une hiérarchisation du spectre : les états p, doublement dégénérés, sont séparés typiquement de 50 meV des états s pour les niveaux de conduction, et seulement d'une dizaine de meV pour les niveaux de valence. Les queues des densités d'états sont dues à la rugosité du puits quantique formé par la couche de mouillage. L'apparition des boîtes se produit pour une épaisseur moyenne de 1.7 monocouches atomiques d'InAs, cela se traduit par une épaisseur locale d'une ou deux monocouches atomiques. Cette dispersion spatiale de l'épaisseur locale de la couche de mouillage est, d'une part, responsable de l'émoussement du profil de densité d'états, et d'autre part, entraîne la formation de terrasses, où les états

délocalisés bidimensionnels peuvent se confiner en fonction de la taille et de l'épaisseur de marche des terrasses. La couche de mouillage ne présente donc pas un profil abrupt de puits quantique parfait (sans rugosité) (en pointillé sur la figure 1.4).

## 1.3 Interaction avec la lumière

### 1.3.1 Règles de sélection optique

Le couplage des états électroniques avec la lumière permet d'exciter différents types de transitions radiatives. Les transitions engageant deux états de valence ou de conduction sont appelées intra-bandes, celles concernant un état de valence et un état de conduction sont désignées par transition inter-bandes. La probabilité de la transition optique est proportionnelle au terme suivant :

$$|\langle \psi_i | H_{dip} | \psi_f \rangle|^2 \quad (1.17)$$

où  $\psi_i$  est la fonction d'onde de l'état initial et  $\psi_f$  celle de l'état final. L'hamiltonien d'interaction dipolaire électrique, désigné par  $H_{dip}$ , s'écrit exactement [27, 28] :

$$H_{dip} = -\frac{q}{m_0} \vec{p} \cdot \vec{A}(\vec{r}) + \frac{q^2 A^2(\vec{r})}{2m_0} \quad (1.18)$$

où  $\vec{A}$  est le potentiel vecteur du champ électromagnétique. Pour les boîtes quantiques d'InAs, les longueurs d'onde des transitions intra-et interbandes sont bien plus grande que les dimensions caractéristiques de la boîte quantique. Dans ces conditions,  $\vec{A}(\vec{r})$  peut être remplacé par sa valeur en  $\vec{r}_0$ , au centre du système. De plus, cette approximation, connue sous le nom d'approximation des grandes longueurs d'onde, permet de ne conserver que le premier terme du hamiltonien. En effet, le terme  $\frac{q^2 A^2(\vec{r}_0)}{2m_0}$ , évalué au point  $\vec{r}_0$ , est un scalaire dont l'élément de matrice entre deux états électroniques différents, orthonormés, est nul. De ce fait, il ne peut générer de transitions optiques.

Avec  $\psi_{i,f}(\vec{r}) = \Phi_{i,f}(\vec{r}) u_{i,f}(\vec{r})$ , où la fonction enveloppe  $\Phi$  est lentement variable à l'échelle d'une maille élémentaire, l'élément de matrice  $\langle \psi_i | H_{dip} | \psi_f \rangle$  se sépare en deux contributions [29] :

$$\begin{aligned} & -\frac{q}{m_0} \vec{A}(\vec{r}_0) \cdot \langle u_i | u_f \rangle \int \Phi_i^*(\vec{r}) \vec{p} \Phi_f(\vec{r}) d^3 \vec{r} \\ & -\frac{q}{m_0} \vec{A}(\vec{r}_0) \cdot \langle u_i | \vec{p} | u_f \rangle \int \Phi_i^*(\vec{r}) \Phi_f(\vec{r}) d^3 \vec{r} \end{aligned} \quad (1.19)$$

Le premier terme est responsable des transitions intrabandes, pour lesquelles  $u_i = u_f$ . Le second terme est responsable des transitions interbandes pour lesquelles, la symétrie des fonctions s est la même entre les états initial et final. Les seules transitions interbandes permises sont donc celles de types  $S_v \leftrightarrow S_c$  et  $P_v \leftrightarrow P_c$ .

Le premier facteur  $\langle u_i | \vec{p} | u_f \rangle$  gouverne les règles de sélection optique en polarisation, que nous détaillons dans le paragraphe suivant.

### Base des états propres de la paire électron-trou

Les transitions interbandes promeuvent un électron de valence dans un état de conduction. L'ensemble des états de valence, privé de l'électron promu, est désigné, dans la physique des semi-conducteurs, par la quasi-particule "trou". Le trou est caractérisé par une énergie, une masse effective, une charge, des moments cinétiques orbital et de spin opposés en signe à ceux de l'état électronique vacant [30, 21, 25]. Dans les semi-conducteurs présentant un ou plusieurs degrés de liberté spatiaux, le potentiel coulombien entre l'électron et le trou induit la localisation commune des deux particules. Le complexe électron-trou lié par interaction coulombienne est appelé "exciton". Dans les boîtes quantiques, le recouvrement spatial de l'électron et du trou est essentiellement dû au potentiel de confinement, et peu à l'interaction coulombienne. Le terme "exciton" est donc ici inapproprié ; dans le cas des boîtes quantiques fortement confinées, nous userons plutôt du terme "paire électron-trou". La description des règles de sélection optique en polarisation dans la base propre des états de paire électron-trou est usuelle et commode.

Les états de paire électron-trou sont construits à partir des états suivants :

- $|h \uparrow (\downarrow)\rangle = |\frac{3}{2}, +(-)\frac{3}{2}\rangle$ , qui désigne les états de trous lourds issus des états électroniques de valence dont les fonctions de Bloch correspondantes (cf. tableau 1.1) sont  $|u_{5(6)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}|X + (-)iY, \downarrow (\uparrow)\rangle = |\frac{3}{2}, +(-)\frac{3}{2}\rangle$ . On note le changement de signe de projection du moment cinétique entre l'état de trou et l'état électronique de valence correspondant.
- On adopte la notation  $|e \uparrow (\downarrow)\rangle = |\frac{1}{2}, +(-)\frac{1}{2}\rangle$  pour les états électroniques de conduction associés aux fonctions de Bloch  $|u_{1(2)}\rangle$ .

On obtient donc quatre états de paire électron-trou, que l'on désigne suivant le moment cinétique total suivant  $z$  :

$$\begin{array}{l} \text{états brillants} \\ \text{états noirs} \end{array} \left\{ \begin{array}{l} |e \downarrow, h \uparrow\rangle = | + 1 \rangle \\ |e \uparrow, h \downarrow\rangle = | - 1 \rangle \\ |e \uparrow, h \uparrow\rangle = | + 2 \rangle \\ |e \downarrow, h \downarrow\rangle = | - 2 \rangle \end{array} \right.$$

Dans cette description, une transition optique crée une paire électron-trou à partir de l'état du vide, noté  $|0\rangle$ . Les règles de sélection optique en polarisation impliquent que le moment cinétique total du système {paire électron-trou (ou état du vide) + photon} soit conservé lors de la transition. Dans cette condition, les états  $| + (-)1 \rangle$  sont couplés à l'état du vide  $|0\rangle$  via l'absorption où l'émission d'un photon  $\sigma^{+(-)}$ , de moment cinétique  $+1(-1)$  suivant  $z$ . On les désigne ainsi par "états brillants". En revanche, la lumière ne peut assurer de transitions optiques entre les états  $| + (-)2 \rangle$  et le vide, ces états sont qualifiés de "noirs". Les états noirs et brillants, sont à ce stade dégénérés. Nous verrons, dans une prochaine section, que la prise en compte de l'interaction coulombienne électron-trou modifie la symétrie des

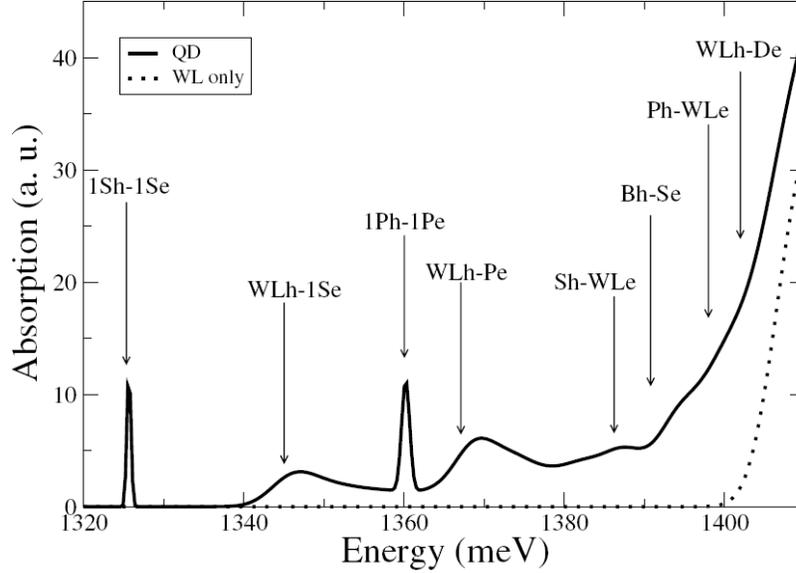


FIGURE 1.5: Calcul du spectre d'absorption interbande d'une boîte unique, prenant en compte les transitions mixtes entre les états liés de la boîte et les états bidimensionnels de la couche de mouillage. En pointillé est représentée l'absorption de la couche de mouillage seule. Figure issue de la référence [31].

états propres et entraîne une levée de dégénérescence entre ces états.

Si on récapitule les règles de sélection optique, seules les transitions interbandes suivantes sont permises :

$$|0\rangle \xleftrightarrow{\sigma^\pm} |S_h, S_e\rangle |\pm 1\rangle$$

$$|0\rangle \xleftrightarrow{\sigma^\pm} |P_h, P_e\rangle |\pm 1\rangle$$

où  $S_h(S_e)$  et  $P_h(P_e)$  sont les fonctions enveloppes associés aux états de trous (d'électrons).

### 1.3.2 Continuum d'absorption

La figure 1.5 présente le spectre d'absorption d'une boîte quantique calculé par A. Vasanelli et coll [31]. Le spectre d'absorption est le reflet de la densité d'états et des règles de sélection optique. Les deux transitions discrètes  $S_h \leftrightarrow S_e$  et  $P_h \leftrightarrow P_e$ , entre les états liés de la boîte, sont bien présentes sur le spectre, sous la forme de raies fines. Par ailleurs, ce spectre met en évidence un quasi-continuum d'absorption qui s'étend entre l'énergie de la transition fondamentale  $S_h \leftrightarrow S_e$  et la queue d'absorption de la couche de mouillage. L'existence de ce continuum, observé par R. Oulton et Y. Toda [32, 33], provient des transitions dites croisés entre les états localisés de la boîte et les états délocalisés de la couche de mouillage. La prise en compte de ces transitions revient donc à autoriser pour l'exciton des combinaisons mixtes, où par exemple le trou est dans un continuum 2D alors que l'électron

est dans un état lié de la boîte. Notons que seule la transition fondamentale est vraiment isolée du continuum.

La mise en évidence de niveaux discrets dans les boîtes quantiques est à l'origine de la comparaison avec les systèmes atomiques [34]. Une propriété remarquable concerne le temps de cohérence  $T_2$  associé à la superposition cohérente des états engagés dans la transition fondamentale  $S_v \leftrightarrow S_c$ . Dans les massifs ou les puits quantiques, le couplage des porteurs aux vibrations du cristal est une source de décohérence efficace qui limite considérablement ce temps. En revanche, dans une boîte quantique, le goulot d'étranglement ou effet "bottleneck" isole, en partie, les états discrets du couplage avec les phonons [35, 36]. De ce point de vue, la boîte quantique se rapproche d'un système modèle à deux niveaux uniquement couplé aux fluctuations du vide. Dans cette situation, le temps de cohérence est seulement limité par le temps  $T_1$  d'amortissement du dipôle électrique dû à l'émission spontanée ( $T_2 = 2T_1$ ). Dans les boîtes d'InAs, le temps de vie d'une paire électron-trou est d'environ une nanoseconde, un temps de cohérence de cette ordre offre des possibilités intéressantes du point de vue de la manipulation quantique de l'information.

### 1.3.3 Structure fine de la paire électron-trou, interaction d'échange

Nous avons mentionné que le recouvrement spatial de la fonction d'onde du trou et celle de l'électron est essentiellement dû au potentiel de confinement. Si l'interaction coulombienne électron-trou  $V_{e-h}$  participe peu au recouvrement, elle est néanmoins exaltée par celui-ci.

L'élément de matrice  $\langle \psi_h, \psi_e | V_{e-h} | \psi_h, \psi_e \rangle$  se scinde en deux contributions :

$$J = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{|\psi_h(\vec{r}_1)|^2 |\psi_e(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (1.20)$$

$$K = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{\psi_h(\vec{r}_1)^* \psi_h(\vec{r}_2) \psi_e(\vec{r}_1) \psi_e(\vec{r}_2)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (1.21)$$

Le premier terme  $J$  est dit "directe", il traduit la mise en présence de deux distributions de charge électrostatique. Ce terme induit, de part le caractère attractif du potentiel coulombien, une augmentation du confinement des états liés de la boîte : d'après A. Vasanelli et coll. la transition fondamentale  $S_h \leftrightarrow S_e$  est abaissée d'environ 20 meV [37].

Le second terme  $K$  est appelé "terme d'échange", il traduit deux contributions :

- La contribution courte portée, qui quantifie l'interaction d'échange électron-trou à l'intérieur d'une cellule unité. Son effet est d'une part de séparer en énergie les états brillants des états noirs, et d'autre part de lever la dégénérescence entre les états noirs.
- La contribution longue portée, qui exprime l'effet de la réduction de la symétrie du potentiel de confinement. Son effet s'ajoute à la contribution courte portée concernant la séparation énergétique entre les états noirs et brillants, et il induit également une levée de dégénérescence entre les états brillants [38, 39, 40].

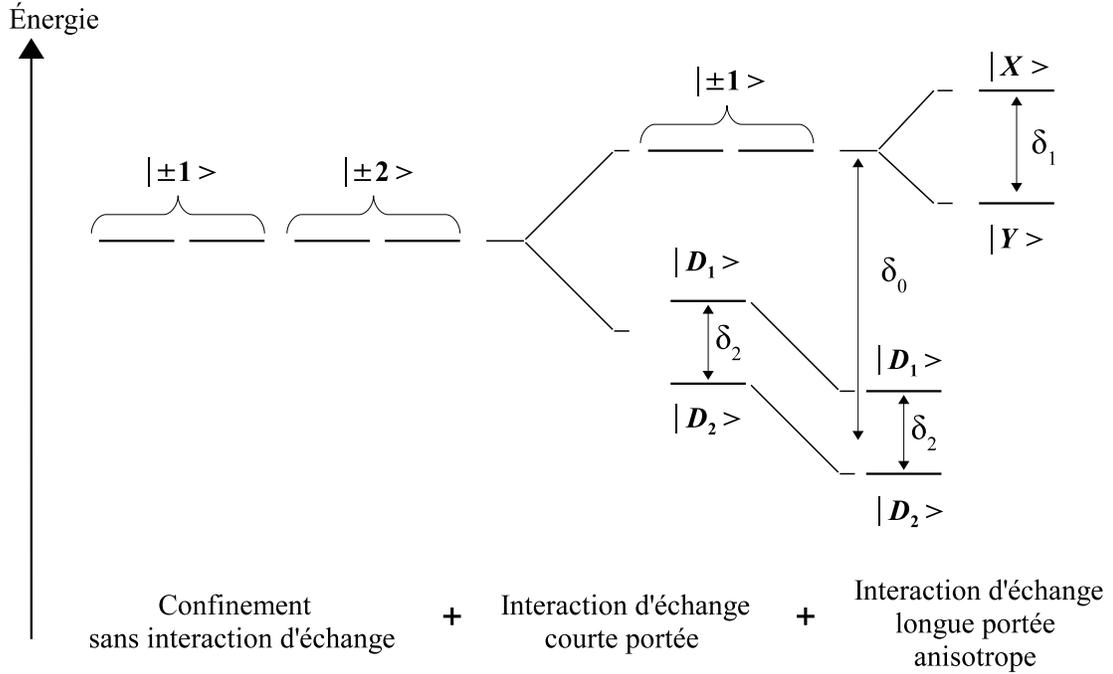


FIGURE 1.6: *Évolution des états propres des paires électron-trou en fonction des contributions de l'interaction d'échange.*

Dans la base des états de paire électron-trou lourd  $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$ , où les états sont spécifiés par la projection du moment cinétique total suivant  $z$ , l'hamiltonien d'échange se décrit sous la forme matricielle suivante [41] :

$$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} \delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\delta_0 \end{bmatrix} \quad (1.22)$$

La diagonalisation de cet hamiltonien conduit aux nouveaux états propres suivants :

$$\text{états brillants} \begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \end{cases} \quad (1.23)$$

$$\text{états noirs} \begin{cases} |D_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle + |-2\rangle) \\ |D_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle - |-2\rangle) \end{cases} \quad (1.24)$$

Les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont couplés à la lumière polarisée linéairement selon les directions  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$ . Ils sont séparés d'une énergie  $\delta_1$ , comprise généralement entre 1 et 100  $\mu\text{eV}$ , appelée "splitting" d'échange anisotrope. Son origine, comme son nom l'indique, provient d'une anisotropie dans le plan des boîtes qui peut être induite, par exemple, par la forme

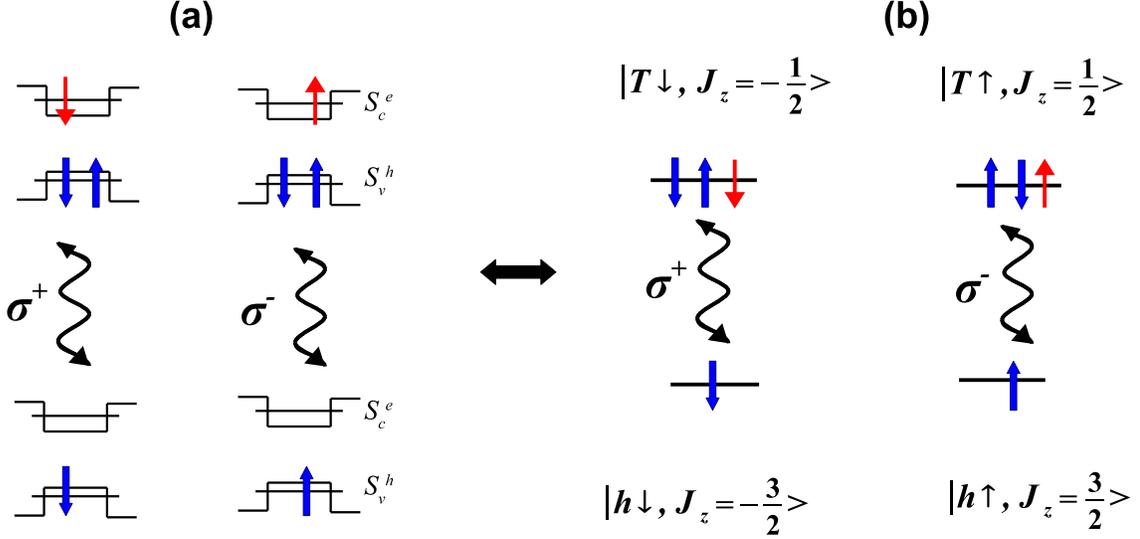


FIGURE 1.7: Le schéma (a) représente les règles de sélection optique entre les niveaux liés de valence et de conduction dans une boîte quantique dopée p ; les trous (électrons) sont désignés par une flèche bleu (rouge). Le schéma (b) est une représentation équivalente dans un système à 4 niveaux, dégénérés deux à deux, dans la base {trous, trions}.

elliptique de la base des boîtes quantiques ou encore par l'asymétrie des contraintes.

Les états  $|D_1\rangle$  et  $|D_2\rangle$  sont séparés d'une énergie  $\delta_2$ , généralement de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{eV}$ . La levée de dégénérescence  $\delta_0$  entre les états noirs et brillants est voisine de 0.5 meV [41].

Les effets de l'interaction d'échange sur les états propres des paires électron-trou sont schématisés sur la figure 1.6.

### 1.3.4 Boîte dopée à un trou

La boîte neutre nous a servi d'exemple modèle pour introduire les notions essentielles concernant le couplage entre les niveaux discrets de la boîte quantique et la lumière. Dans l'idée de transférer la polarisation de spin photocréée à un porteur résident, pour qu'elle perdure au-delà du temps de vie radiatif, cette thèse se concentre particulièrement sur les boîtes dopées. Les résultats qui y sont rapportés portent sur les boîtes dopées en trou.

Nous présentons ici les règles de sélection optique concernant la transition fondamentale  $S_v \leftrightarrow S_c$  dans une boîte quantique dopée avec un trou.

Le dopage au carbone (cf. section (1.1.2)) prive le niveau de valence dégénéré  $|S_v\rangle|J_z^e = \pm\frac{3}{2}\rangle$  d'un de ses deux électrons. Cela se traduit par un état fondamental occupé par un trou, qui peut être décrit dans la base  $\{|h \uparrow\rangle, |h \downarrow\rangle\} \equiv \{|\frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle\}$ .

Le couplage avec la lumière promeut l'électron de valence restant sur un état de conduction  $|e \uparrow (\downarrow)\rangle$ , en laissant ainsi deux états de valence vacants. En terme d'électron-trou, l'état

excité est donc composé de deux trous antiparallèles et d'un électron de conduction. De par le bilan des charges, qui est positif, on désigne ce complexe à trois particules par trion  $X^+$ . Les états propres du trion sont les suivants :  $\{|e \uparrow, h \downarrow, h \uparrow\rangle, |e \downarrow, h \uparrow, h \downarrow\rangle\}$ , que l'on note de manière abrégés par  $\{|T \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle\}$ . Plusieurs considérations s'imposent :

- La configuration singulet des trous dans l'état trion entraîne que les interactions d'échange électron-trou sont compensées dans l'état  $X^+$ .
- Le moment cinétique total, qui est un moment cinétique de spin, de l'état trion est celui de l'électron de conduction :  $\{|T \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle\} \equiv \{|\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle, |\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle\}$ .

La conservation du moment cinétique lors d'une transition {trou + photon  $\leftrightarrow$  trion} induit que l'état  $|h \uparrow (\downarrow)\rangle$  est couplé à l'état  $|T \uparrow (\downarrow)\rangle$  via l'absorption ou l'émission d'un photon polarisé  $\sigma^{-(+)}$ . Le choix de la polarisation lumineuse d'excitation détermine donc l'orientation de spin de l'état photocréé. Les règles de sélection optique sont résumées sur la figure 1.7.

## 1.4 Ralentissement de la relaxation du spin

Une autre des propriétés remarquables dues au confinement, et de plus intimement lié aux travaux rapportés dans ce manuscrit, est le ralentissement de la relaxation de spin d'un porteur. Pour mieux saisir les conséquences du confinement, nous commençons par rappeler les principaux mécanismes de relaxation de spin agissant dans les semi-conducteurs massifs [7].

### 1.4.1 Matériaux massifs

#### – Mécanisme de Dyakonov-Perel

Ce mécanisme apparaît dans les cristaux massifs ne possédant pas de centre de symétrie d'inversion, comme les composés binaires GaAs et InAs. Il tire son origine de l'interaction spin-orbite. Dans l'approche  $\vec{k}, \vec{p}$ , ce mécanisme provient de l'influence des bandes d'énergie supérieures de conduction  $\Gamma_{7c}$  et  $\Gamma_{8c}$  (que nous n'avons pas considérées jusque-là) sur les bandes  $\Gamma_6$ ,  $\Gamma_8$  et  $\Gamma_7$  [42]. Cela conduit, dans l'écriture de l'hamiltonien effectif pour les électrons de conduction, à la présence d'un terme supplémentaire en  $k^3$  (dit de Dresselhaus) :

$$H_c = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \alpha(\vec{\kappa} \cdot \vec{S}) \quad (1.25)$$

$$\text{avec } \kappa_z = k_z(k_x^2 - k_y^2), \text{ etc.}$$

où  $\vec{S}$  est le spin de l'électron et  $\alpha$  un paramètre qui inclut les contributions des bandes  $\Gamma_{7c}$  et  $\Gamma_{8c}$ . Notons que ce terme est non nul en l'absence de centre de symétrie d'inversion. Les autres composantes de  $\vec{\kappa}$  sont obtenues par permutation circulaire à partir de l'expression de  $\kappa_z$ . De l'expression (1.25), il apparaît que deux électrons de même  $\vec{k}$  mais de projection de spin opposées n'ont pas la même énergie. La dégénérescence de spin de la bande  $\Gamma_8$  est levée pour  $\vec{k} \neq 0$ . Cette situation est équivalente à celle d'électrons plongés dans un champ

magnétique. On peut donc considérer, de ce point de vue, l'interaction spin-orbite de Dresselhaus comme un champ magnétique effectif agissant sur chaque électron, dont l'amplitude et la direction dépend de  $\vec{k}$ .

Pour relaxer le spin de l'électron, il faut ajouter un autre ingrédient : la diffusion d'un état de vecteur d'onde  $\vec{k}_1$  vers un état  $\vec{k}_2$ . A chaque processus diffusif, caractérisé par un temps libre moyen  $\tau_d$ , l'électron change de moment  $\vec{k}$  et donc ressent un champ magnétique différent. En fonction de la fréquence  $w$  de précession de l'électron dans le champ effectif on distingue deux cas de figures :

1. Lorsque  $w\tau_d > 1$ , le spin de l'électron précesse de nombreuses fois autour du champ effectif entre deux événements diffusifs. La direction moyenne du spin est donc celle du champ. Le champ effectif réalise toutes les orientations possibles au bout d'un temps  $\sim \tau_d$ . La direction moyenne du spin est donc perdue au bout de ce temps, et le temps de relaxation de spin est  $\tau_s \sim \tau_d$ .
2. Lorsque  $w\tau_d \ll 1$ , l'angle  $w\tau_d$  dont a tourné le spin entre deux événements diffusif est faible. Sur une échelle de temps  $t \gg \tau_d$ , le champ change plusieurs  $(\frac{t}{\tau_d})$  fois d'orientation. La succession de déplacements élémentaires angulaires du spin, autour d'un champ à chaque fois différent, conduit sur cette échelle de temps à un parcours angulaire moyen  $\Delta\Theta$  nul. En revanche la moyenne quadratique  $\overline{\Delta\Theta^2}$  ne l'est pas, et permet d'évaluer le temps de relaxation. Le spin relaxe lorsqu'il y a eu un nombre suffisant d'évènements diffusifs pour qu'il ait perdu son orientation initiale, ce qui se traduit par  $\overline{\Delta\Theta^2} \sim 1$ . Avec  $\overline{\Delta\Theta^2} = (w\tau_d)^2 \frac{t}{\tau_d}$  où,  $\frac{t}{\tau_d}$  est le nombre d'évènements diffusifs, on en déduit pour  $t \rightarrow \tau_s$  et  $\overline{\Delta\Theta^2} \sim 1$  :  $\tau_s \sim \frac{1}{w^2\tau_d}$ .

On retiendra que ce mécanisme est basé sur l'interaction spin-orbite couplée aux processus diffusifs. Il a été montré qu'il est prépondérant à haute température, dans la dynamique de spin des hétérostructures de semiconducteurs ne possédant pas de centre de symétrie d'inversion.

– **Mécanisme d'Elliott-Yafet :**

Ce mécanisme est également basé sur l'interaction spin-orbite. Les conséquences de cette interaction qui nous intéresse, ici, concerne le mélange des états de spin dans la bande de conduction. Dans la théorie  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , le couplage spin-orbite associé aux perturbations des bandes  $\Gamma_8$  et  $\Gamma_7$  en  $\vec{k} \neq 0$  entraîne le mélange des fonctions d'onde de spins électroniques différents. Ce mélange entre les états de spin "up" et "down" dépend de  $\vec{k}$ . Il en résulte qu'un évènement diffusif, provoquant le changement du vecteur d'onde  $\vec{k}$  de l'électron, induit également un changement de son état de spin. Le temps caractéristique de relaxation du spin est donc lié au temps libre moyen  $\tau_d$  de diffusion du vecteur d'onde  $\vec{k}$ , qui est d'autant plus court que les processus diffusifs sont nombreux. Citons, à cet égard, l'interaction avec les phonons du réseau, particulièrement efficace à haute température, ou encore le couplage coulombien avec des impuretés ionisées.

### 1.4.2 Boîtes quantiques

Les mécanismes mentionnés ci-dessus reposent sur l'existence de processus diffusifs. Dans une boîte quantique, où les porteurs sont localisés, la diffusion du vecteur d'onde n'a pas de sens ; ces mécanismes sont donc inhibés [1, 2]. On s'attend donc à des temps de relaxation de spin beaucoup plus longs dans les boîtes quantiques que dans les massifs.

Citons à ce sujet les travaux de M. Paillard et coll., où le temps de relaxation de spin de l'exciton est étudié à travers une expérience de photoluminescence résonnante résolue en temps, sur un ensemble de boîtes InAs/GaAs [5]. Les résultats de leur expériences sont significatifs, le temps de relaxation de spin de l'exciton, orienté suivant l'état propre  $|X\rangle$  ou  $|Y\rangle$ , est gelé sur plusieurs dizaines de nanosecondes. Cela indique bien que les mécanismes évoqués ci-dessus sont inhibés.

Néanmoins, la durée de vie du spin d'un exciton, espèce photocréée, reste toujours limitée par le temps de vie radiatif de cet état excité. Au contraire, le spin de porteurs issus du dopage, électrons ou trous, peut être conservé au-delà de cette limite radiative.

Si le confinement supprime les mécanismes de relaxation de spin liés à la diffusion, d'autres processus comme l'interaction hyperfine sont en revanche exaltés. En effet, si l'intensité moyenne du couplage hyperfin entre le spin d'un électron (ou d'un trou) et les spins des noyaux environnants est peu dépendante du volume de localisation de l'électron, les fluctuations de ce couplage sont en revanche inversement proportionnelle au nombre de noyaux avec lequel l'électron interagit, donc à l'étendue spatiale de la fonction d'onde. Les effets liés à l'interaction hyperfine sont donc bien plus importants dans les boîtes quantiques que dans les matériaux massif. Les divers aspects de cette interaction, du point de vue de la relaxation et de la polarisation de spin, occupe une place majeure dans ce manuscrit et seront décrits dans les chapitres 3, 4, 5 et 6.



## Chapitre 2

# Expérience pompe-sonde résolue en temps

### Sommaire

---

2.1	Principe de l'expérience . . . . .	<b>34</b>
2.2	Dispositif expérimental . . . . .	<b>35</b>
2.2.1	Schéma du montage . . . . .	35
2.2.2	Détection synchrone du signal . . . . .	38
2.3	Description microscopique du signal mesuré . . . . .	<b>40</b>
2.3.1	Expression du champ total en fonction de l'état du système . . . . .	40
2.3.2	Signal de dichroïsme circulaire, différences des populations . . . . .	43

---

Dans ce chapitre, nous présentons l'expérience permettant de mener à bien notre étude. Nous entrons dans le vif du sujet en décrivant le dispositif expérimental dans son ensemble, ainsi que le principe de l'expérience pompe-sonde. Dans la dernière partie, nous établissons le lien entre le signal de photo-détection et l'état microscopique de spin des boîtes quantiques étudiées.

## 2.1 Principe de l'expérience

Pour étudier la dynamique de spin des états de plus basse énergie dans nos échantillons, nous utilisons une expérience pompe-sonde. Ce type d'expérience consiste à exciter l'échantillon par une impulsion laser (dite pompe) dans un premier temps, puis à sonder l'échantillon par une deuxième impulsion laser plus faible (dite sonde) dans un second temps. Lorsque la sonde traverse l'échantillon, après excitation par la pompe, certaines de ses propriétés sont modifiées. Ceci permet d'obtenir des informations sur l'état de l'échantillon au moment où il interagit avec l'impulsion sonde. En faisant varier le délai entre les impulsions pompe et sonde, on peut suivre la dynamique, après excitation optique, de l'échantillon étudié. Les boîtes étudiées à l'intérieur de l'échantillon sont majoritairement celles qui possèdent une transition fondamentale accordée avec l'énergie de la sonde. Dans notre expérience, nous avons deux configurations distinctes d'excitation :

- La configuration résonnante : les faisceaux de pompe et de sonde proviennent du même laser [Laser (1), figure 2.1] et sont dégénérés en énergie ; on pompe et on sonde la même transition optique de l'échantillon. L'excitation est donc résonnante avec la transition étudiée.
- La configuration non résonnante ou "2 couleurs" : un second laser [Laser (2), figure 2.1] synchronisé au premier permet d'accorder l'énergie de la pompe indépendamment de celle de la sonde. On peut choisir de travailler dans une configuration quasi résonnante ou d'exciter le système à une énergie supérieure à celle de la sonde.

### **Impulsion pompe : orientation optique**

L'impulsion de pompe crée, par pompage optique, une polarisation de spin sur les porteurs photocréés. Dans le cas d'une boîte quantique neutre, le pseudo-spin ( $L_z = \pm 1$ ) des états propres de l'exciton est contenu dans le plan des boîtes (cf. chapitre 1). Au contraire, pour une boîte dopée, le spin de l'état excité et celui de l'état fondamental sont suivant l'axe  $z$  de croissance de l'échantillon, qui est aussi, dans notre expérience, l'axe de propagation de la lumière.

### **Délai pompe-sonde : relaxation**

Dans l'intervalle de temps entre l'excitation par l'impulsion pompe et le passage de l'impulsion sonde, le système évolue librement. Notamment, les porteurs photocréés peuvent, avant de se recombiner, perdre leur polarisation par des phénomènes de relaxation. En se recombinant, ils peuvent, dans le cas de boîtes quantiques dopées, transférer une polarisa-

tion de spin aux trous ou aux électrons issus du dopage.

### **Impulsion sonde : états excités et états fondamentaux**

L'impulsion de sonde, résonnante sur une transition optique, peut être absorbée ou induire une émission stimulée sur cette transition ; nous avons ainsi accès, en analysant le faisceau de sonde après l'échantillon, à la fois aux propriétés des états fondamentaux et à celles des états excités. En particulier pour les boîtes dopées p, on peut étudier à la fois la polarisation de spin portée par des électrons de conduction, et celle portée par les trous issus du dopage, qui peut perdurer au-delà de la durée de vie des états excités.

Remarquons que, contrairement à la photoluminescence résolue en temps, on peut ici, mesurer l'état du système à des temps supérieurs au temps de vie de la paire électron-trou photocréée. Cette technique est donc bien adaptée à l'étude d'un système porteur d'une polarisation de spin dans son état fondamental. A cet égard, des découvertes majeures pour la manipulation optique de spin ont été réalisées à l'aide de ce type de dispositif. Citons notamment l'observation d'un temps de cohérence de spin très long ( $\sim 100$  ns) dans les massifs dopés de GaAs et les gaz d'électrons bi-dimensionnels de semiconducteurs II-VI [4, 43].

## **2.2 Dispositif expérimental**

### **2.2.1 Schéma du montage**

Dans le cadre du dispositif expérimental, il est possible de se placer dans différentes configurations : rotation Faraday, dichroïsme (linéaire ou circulaire), ou transmission différentielle [44, 45, 46]. Chacune de ces configurations donne accès à des paramètres précis du système étudié. Les expériences qui sont présentées dans ce manuscrit ont toutes été effectuées en configuration de dichroïsme circulaire. C'est ce dont il est question dans cette partie. La figure 2.1 représente le schéma de l'expérience pompe-sonde. Dans ce montage, deux configurations d'excitation sont couplées. Nous décrivons tout d'abord la configuration "résonnante" ; celle-ci utilise le montage optique issu du laser (1). Nous discutons ensuite de la deuxième ligne optique provenant du second laser (2).

#### **Configuration résonnante**

Les impulsions lumineuses sont produites par des lasers Titane-Saphir pulsés à 76 MHz (soit une impulsion toutes les 13 ns environ). Les impulsions ont une largeur temporelle de 3 ps, qui correspond à une largeur spectrale d'environ 0.3 meV, et peuvent être ajustées en longueur d'onde entre 690 et 950 nm (soit de 1,80 à 1,30 eV). La puissance moyenne en sortie du laser est typiquement 1,5 W.

Pompe et sonde sont ensuite séparées par une lame séparatrice ; après cette lame, 90 % de la puissance lumineuse se trouve dans le faisceau de pompe et 10 % dans celui de sonde. La pompe est alors envoyée sur une ligne à retard [LR (1), figure 2.1] , qui permet de faire

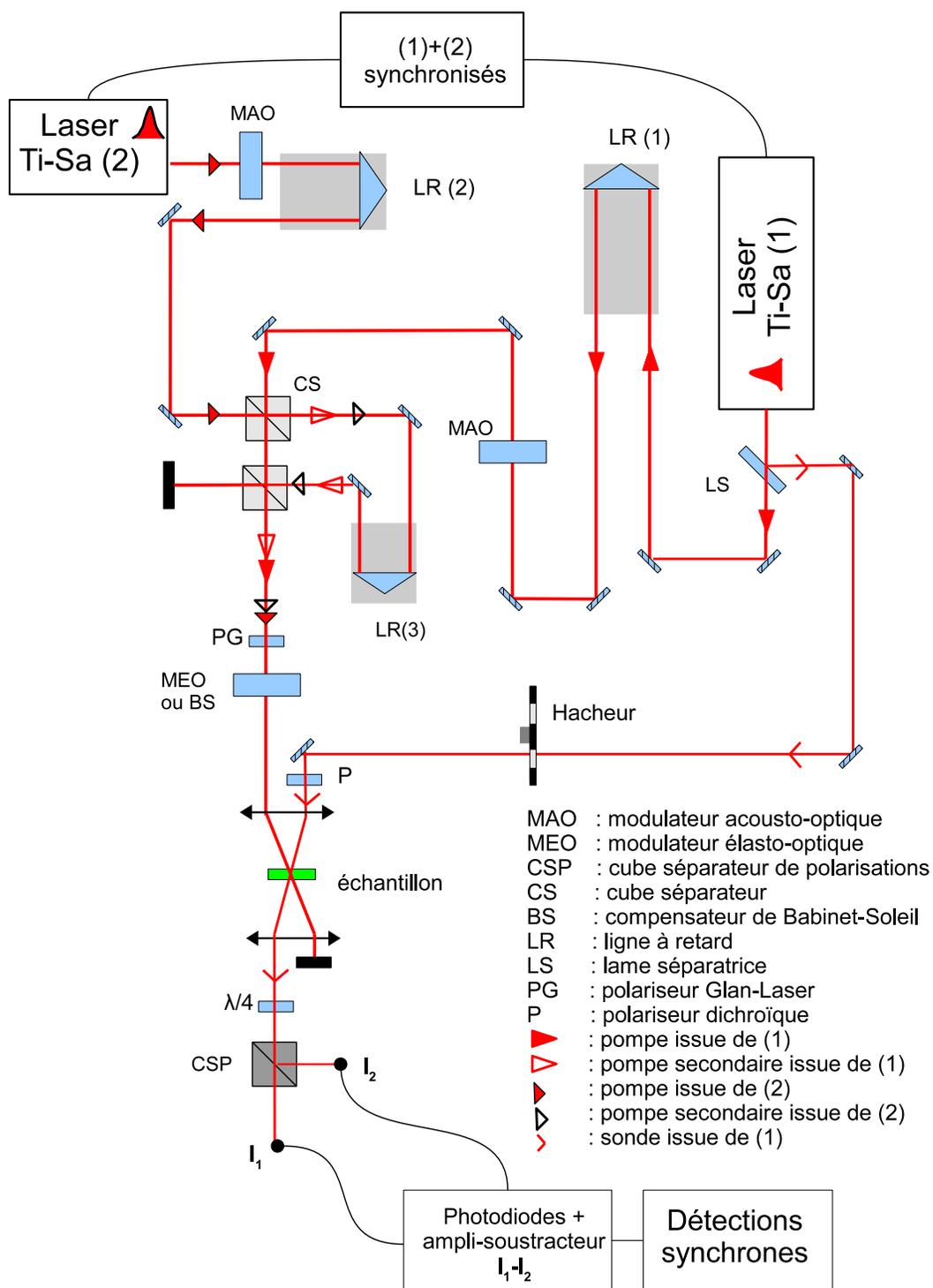


FIGURE 2.1: Dispositif expérimental pompe(s)-sonde

varier le délai pompe-sonde entre  $-1$  ns et  $2$  ns environ.

Avant d’atteindre l’échantillon, la pompe est modulée en polarisation ou en intensité. Dans le premier cas, la pompe traverse un polariseur de Glan-Laser (PG) suivi d’un modulateur élasto-optique (MEO) qui permet d’alterner la polarisation circulaire à une fréquence fixe de  $42$  kHz. Dans le deuxième cas, la modulation d’intensité est obtenue grâce à un modulateur acousto-optique (MAO) ; la polarisation circulaire, constante, est fixée par le GL suivi d’un compensateur de Babinet-Soleil. La modulation est contrôlée en forme et en fréquence par un générateur de fonctions. L’étude du signal photo-induit en fonction des paramètres de modulation d’intensité est à la base de la technique présentée au chapitre 5, qui nous permet d’accéder à des dynamiques temporelles de  $100$  ns à  $1$  ms (c’est-à-dire  $10$  à  $10^5$  plus grandes que la plage d’excursion temporelle “traditionnelle” imposée par la période de répétition des impulsions).

Concernant la sonde, elle est polarisée linéairement à l’aide d’un polariseur dichroïque ; elle est également modulée en intensité par un hacheur mécanique à une fréquence voisine de  $1$  kHz. Après avoir traversé l’échantillon, la sonde passe par une lame quart d’onde, avant d’être envoyée sur le cube séparateur de polarisations, ce qui revient à analyser la sonde selon ses deux composantes circulaires. Chacune des composantes est envoyée sur une photodiode ; le signal expérimental est la différence des tensions délivrées par les deux photodiodes.

### Configuration “2 couleurs”

Dans cette configuration, la pompe provenant du laser (1) est masquée. L’impulsion de pompe provient du deuxième laser impulsional, elle peut donc être accordée en énergie indépendamment de l’énergie de la sonde [toujours issue du laser (1)]. Les deux lasers sont synchronisés à l’aide d’un dispositif “Lock to clock”. Cet appareil permet d’asservir la période et le décalage temporel des trains d’impulsions provenant des deux lasers. Afin d’ajuster le délai pompe-sonde, et ainsi de réaliser une acquisition résolue en temps, la pompe issue du laser (2) passe également par une ligne à retard [LR (2)]. Précisons que, comme dans le cas résonnant, la pompe peut être modulée en intensité (MAO) ou en polarisation (MEO). Cette configuration est étudiée en détail dans les chapitres 4 et 6.

### Excitation à deux impulsions

Une troisième ligne à retard est également présente sur le montage [L.R (3) figure 2.1]. Elle est associée à une paire de cubes séparateurs. Le premier cube divise l’impulsion pompe initiale en deux, puis la ligne à retard les sépare temporellement d’environ  $1,5$  ns et enfin le second cube les réunit. On peut générer ainsi des salves, contenant deux impulsions pompes, toutes les  $13$  ns. Le contrôle optique du spin résident par ce type d’excitation est étudié dans le dernier chapitre.

La dernière étape du dispositif est l'analyse du signal sonde, que nous précisons dans la partie suivante.

### 2.2.2 Détection synchrone du signal

Le signal détecté est la différence d'intensité des deux composantes circulaires du faisceau sonde ( $\Delta I$ ). Cependant, il demeure toujours une partie de la diffusion du faisceau pompe dans la direction du faisceau sonde ; cette diffusion parasite de la pompe est photodétectée et perturbe la mesure. En effet, le temps de réponse des photo-diodes étant bien plus grand que le délai temporel entre la pompe et la sonde (10 ps – 13 ns), il est impossible d'isoler uniquement le signal sonde dans la photodétection. Afin de pallier ce problème et d'augmenter le rapport signal à bruit de la mesure, les faisceaux pompe et sonde sont modulés.

#### Modulation du signal

Le principe de la modulation, et de l'analyse du signal qui en découle, est le suivant. L'excitation est modulée à la fréquence  $\omega_p$  : les propriétés photoinduites dans l'échantillon sont donc elles aussi modulées à cette fréquence. La mesure que l'on fait est proportionnelle à l'intensité de la sonde<sup>1</sup>, modulée à  $\omega_s$ , et aux propriétés photoinduites dans l'échantillon, modulées à  $\omega_p$ . Ainsi, le signal qui nous intéresse ( $S_{photo}$ ), modulé aux fréquences somme et différence des deux précédentes, peut être dans un premier temps exprimé de la manière suivante :

$$S_{photo}(t) = A(\varepsilon) \cos w_p t \cos w_s t = \frac{A(\varepsilon)}{2} [\cos(w_p + w_s)t + \cos(w_p - w_s)t] \quad (2.1)$$

où  $A(\varepsilon)$  est la grandeur que l'on cherche à extraire, c'est-à-dire l'amplitude du signal photoinduit qui dépend du paramètre de l'expérience  $\varepsilon$  (délai pompe-sonde, champ magnétique, énergie d'excitation, etc.). Ce signal est ensuite analysé par un jeu de détections synchrones afin d'extraire la partie photo-induite recherchée  $A(\varepsilon)$ .

#### Analyse synchrone

La détection synchrone est composée d'un multiplieur et d'un filtre. Son action consiste à multiplier le signal d'entrée par un cosinus de fréquence choisie ( $w_{ref}$ ) et d'intégrer le tout pendant un temps déterminé  $\tau$  (filtre passe-bande en mode intégrateur). Afin de s'approcher un peu plus de la réalité expérimentale, ajoutons au signal photo-induit  $S_{photo}$  deux sources de bruit :

- $B$  un bruit constant dont les origines sont multiples (photons parasites ne provenant pas des lasers, bruit électronique...),
- $B_p(t) = B_p \cos w_p t$  la diffusion parasite de la pompe (modulée à  $\omega_p$ ) photodétectée dans le chemin sonde que nous avons mentionné dans le paragraphe précédant.

---

1. Nous démontrons rigoureusement ce point dans la partie 2.3.

Le signal arrivant dans les détection synchrones s'écrit donc :

$$\begin{aligned} S(t) &= S_{photo}(t) + B_p(t) + B \\ &= \frac{A(\varepsilon)}{2} [\cos(w_p + w_s)t + \cos(w_p - w_s)t] + B_p \cos w_p t + B \end{aligned} \quad (2.2)$$

La première action de la détection synchrone est de multiplier le signal par un cosinus de fréquence de référence  $w_{ref}$  :  $S(t) \cos w_{ref} t$ . Afin d'extraire  $A(\varepsilon)$ , on choisit une fréquence de référence qui porte  $A(\varepsilon)$  :  $(w_p + w_s)$  ou  $(w_p - w_s)$ . Avec par exemple  $w_{ref} = w_p + w_s = \omega_\Sigma$ , on obtient :

$$\begin{aligned} S(t) \cos w_{ref} t &= \\ \frac{A(\varepsilon)}{4} [1 + \cos 2\omega_\Sigma t + \cos 2w_p t + \cos 2w_s t] + \frac{B_p}{2} [\cos(2w_p + w_s)t + \cos w_s t] + B \cos \omega_\Sigma t \end{aligned} \quad (2.3)$$

La valeur moyenne  $\Delta I$  de cette quantité pendant le temps  $\tau$  d'intégration est ensuite extraite :  $\Delta I = \frac{1}{\tau} \int_0^\tau S(t) \cos(w_{ref} t) dt$ , ce qui constitue la deuxième opération de la détection synchrone. Avec la relation suivante :

$$\frac{1}{\tau} \int_0^\tau \cos[\alpha t] dt = \frac{1}{\tau \alpha} \sin[\alpha \tau], \quad \alpha \in \mathbb{R}^* \quad (2.4)$$

on obtient,

$$\begin{aligned} \Delta I &= \frac{A(\varepsilon)}{4} \left[ 1 + \frac{\sin 2\omega_\Sigma \tau}{2\tau \omega_\Sigma} + \frac{\sin 2w_p \tau}{2\tau w_p} + \frac{\sin 2w_s \tau}{2\tau w_s} \right] \\ &+ \frac{B_p}{2} \left[ \frac{\sin(2w_p + w_s) \tau}{2\tau(2w_p + w_s)} + \frac{\sin w_s \tau}{\tau w_s} \right] + B \frac{\sin \omega_\Sigma \tau}{\tau \omega_\Sigma} \end{aligned} \quad (2.5)$$

Lorsque le temps d'intégration  $\tau$  est bien plus grand que les périodes de modulation :  $\tau \gg \omega_s^{-1}, \omega_p^{-1}, \frac{1}{\tau \omega} \rightarrow 0$ . Tous les termes oscillants de l'équation (2.5), incluant le bruit  $B$  et la diffusion pompe  $B_p$ , deviennent négligeables devant le terme constant de  $\Delta I$ . Finalement, le signal en sortie de détection synchrone devient uniquement proportionnel à  $A(\varepsilon)$ .

La modulation des faisceaux pompe et sonde, couplée à l'analyse synchrone, permet donc d'isoler la grandeur recherchée  $A(\varepsilon)$  malgré le bruit inhérent à l'expérience.

### Remarque

La description formelle du signal  $S_{photo}(t)$  que nous donnons dans l'équation (2.1) est incomplète. En effet, le signal contient également les harmoniques des fréquences fondamentales  $(\omega_p, \omega_s)$  accompagnées de leurs phases  $(\varphi_i, \phi_i)$ . Le signal étant périodique, il est décomposable en série de Fourier de la manière suivante :

$$S_{photo}(t) = A(\varepsilon) \left( \sum_n a_n \cos[nw_p t + \varphi_n] \right) \left( \sum_k b_k \cos[kw_s t + \phi_k] \right), \quad (k, n) \in \mathbb{N}^2 \quad (2.6)$$

De même, le bruit  $B_p$  provenant du faisceau pompe s'écrit :

$$B_p(t) = B_p \sum a_n \cos[nw_p t + \varphi_n] \quad (2.7)$$

$A(\epsilon)$  est toujours la grandeur que l'on cherche à extraire. Les coefficients  $(a_i, b_i, \varphi_i, \phi_i)$  sont indépendants, en première approximation, du paramètre d'expérience  $\epsilon$  (délai pompe-sonde, champ magnétique, énergie d'excitation, puissance optique, etc.). Ils dépendent uniquement des caractéristiques de la modulation (fonction de forme de la modulation, fréquence, rapport cyclique).

L'analyse synchrone du signal décrit ci-dessus conduit au même résultat que le cas simplifié précédent : les harmoniques et le bruit sont éliminés par le filtre de la détection synchrone, si le temps d'intégration est suffisamment grand devant les périodes de modulations  $\omega_s^{-1}$  et  $\omega_p^{-1}$ . Seule la composante portée par la fréquence de référence  $(w_p + w_s)$  où  $(w_p - w_s)$  est extraite.

Précisons que, afin d'obtenir une mesure indépendante des phases de modulation, on extrait simultanément le signal photoinduit en phase et en quadrature avec le signal de référence. La multiplication du signal d'entrée par  $\cos w_{ref} t$  et par  $\sin w_{ref} t$  permet d'obtenir, respectivement, la composante en phase  $A(\epsilon)a_1 b_1 \cos(\varphi_1 + \phi_1)$  et la composante en quadrature  $A(\epsilon)a_1 b_1 \sin(\varphi_1 + \phi_1)$ . On obtient le module  $|A(\epsilon)a_1 b_1|$  par la racine de la somme du carré de ces deux termes.

## 2.3 Description microscopique du signal mesuré

Après avoir présenté l'aspect macroscopique du dispositif expérimental, nous nous intéressons ici à l'origine microscopique du signal mesuré. Nous établissons le lien entre la mesure du dichroïsme circulaire photo-induit et les populations des états électroniques dans l'échantillon de boîtes quantiques dopées p. La démarche du calcul est la suivante : nous décrivons tout d'abord le champ sonde transmis en fonction de l'état du système pendant l'impulsion sonde. Nous établissons ensuite la relation entre l'état du système pendant l'impulsion sonde et l'état juste antérieur au passage de celle-ci. Nous montrons finalement que la différence d'intensité des composantes circulaires du champ sonde est proportionnelle à la différence des populations des états photocréés et résidents des boîtes quantiques.

### 2.3.1 Expression du champ total en fonction de l'état du système

En configuration de dichroïsme circulaire, la pompe est polarisée circulairement et la sonde linéairement [voir figure 2.2 (b)]. Une lame quart d'onde associée à un cube séparateur de polarisations permet d'analyser le champ sonde transmis selon ses deux composantes circulaires. La grandeur mesurée est la différence d'intensité des deux composantes circulaires.

#### Champ sonde avant interaction

Pour la mesure du dichroïsme circulaire, sur des boîtes dopées ayant des états propres

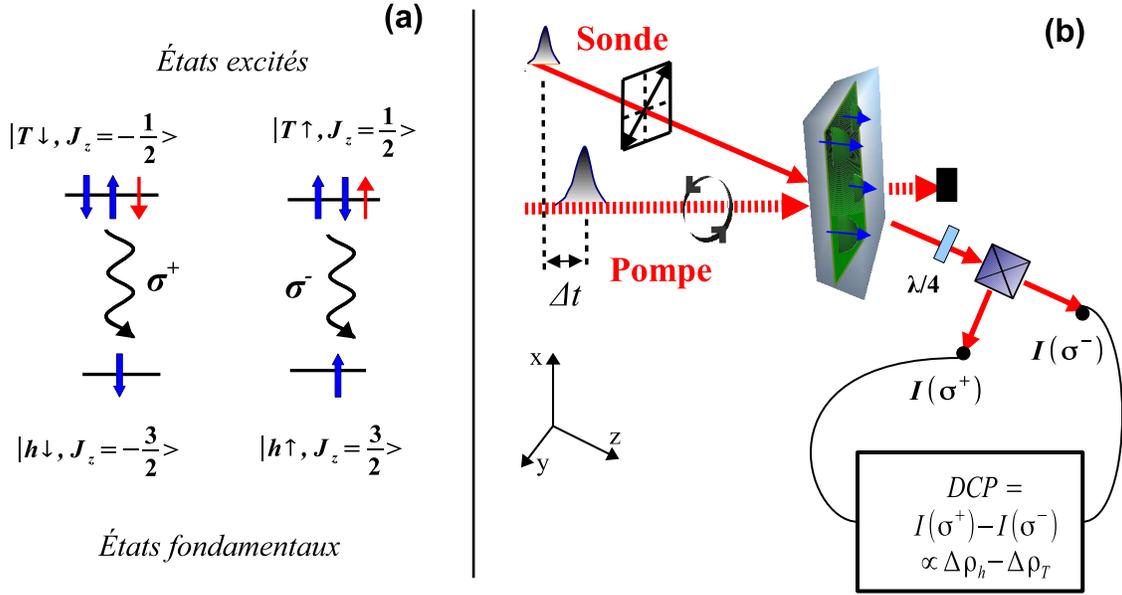


FIGURE 2.2: (a) Règles de sélection optique pour une boîte quantique dopée p contenant un trou résident;  $|h\uparrow(\downarrow)\rangle$  et  $|T\uparrow(\downarrow)\rangle$  désignent les états fondamentaux du trou et du trion, respectivement. (b) Configuration de dichroïsme circulaire photo-induit (DCP);  $\Delta\rho_h$  et  $\Delta\rho_T$  désignent la différence des populations des états de trous et de trions, respectivement.

circulaires, l'orientation de la polarisation linéaire du faisceau sonde, par rapport aux axes cristallins du plan de croissance de l'échantillon, n'a pas d'importance.

Soit  $(\vec{e}_x, \vec{e}_y)$  une base linéaire du plan de polarisation du champ électrique. On choisit  $\vec{e}_x$  suivant la polarisation de la sonde. Avant interaction avec l'échantillon, on exprime le champ sonde de la manière suivante<sup>2</sup> :

$$\vec{E}_s(t) = [\sqrt{2}E_s(t)\vec{e}_x] e^{-i\omega t} + c.c. = [E_s(t)\vec{e}_+ + E_s(t)\vec{e}_-] e^{-i\omega t} + c.c.$$

$$\text{où } \vec{e}_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y), \quad E_s(t) = E_0\eta(t - \tau) \quad (2.8)$$

avec  $\tau$  le délai temporel entre la pompe et la sonde, et  $E_0\eta(t)$  l'enveloppe de l'impulsion sonde.

### Champ total transmis

Le champ total transmis  $\vec{E}_{transmis}^{tot}$ , après la traversée de l'échantillon par le faisceau sonde, est le résultat du champ incident sommé de la contribution des boîtes quantiques due à l'interaction optique du champ sonde. Les parties stimulée et absorbée du champ  $\vec{E}_{transmis}^{tot}$  sont contenues dans le champ  $\vec{E}_B$  émis par les boîtes quantiques pendant le passage de

2. En configuration de transmission, la phase spatiale  $e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  du champ électromagnétique ne joue pas de rôle.

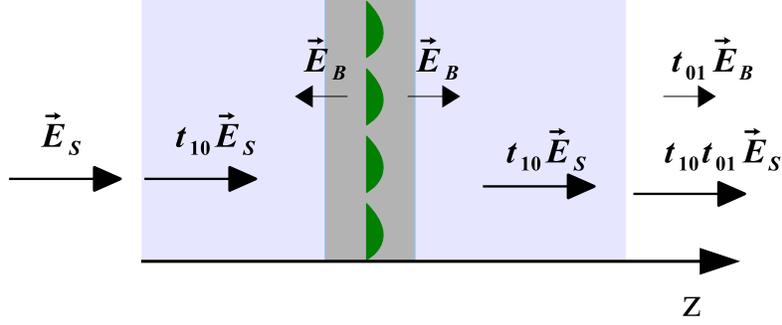


FIGURE 2.3: Représentation schématique de la transmission du faisceau sonde à travers une structure contenant un plan de boîtes avec son substrat. Les longues flèches représentent le champ sonde incident ( $\vec{E}_s$ ,  $t_{10}\vec{E}_s$ ,  $t_{10}t_{01}\vec{E}_s$ ). Les petites flèches désignent le champ émis par le plan de boîtes quantiques ( $\vec{E}_B$ ,  $t_{01}\vec{E}_B$ ). Les coefficients de transmission en amplitude sont désignés par  $t_{10}$  et  $t_{01}$ .

l'impulsion pompe [47, 48]. Le champ total s'exprime alors comme la somme du champ sonde incident  $\vec{E}_s$  et du champ  $\vec{E}_B$  émis par les boîtes quantiques (voir figure 2.3). En considérant les facteurs de transmission en amplitude ( $t_{10}$ ,  $t_{01}$ ) du matériau, le champ total transmis s'écrit :

$$\vec{E}_{transmis}^{tot} = t_{10}t_{01}\vec{E}_s + t_{01}\vec{E}_B = \vec{E}_s^t + \vec{E}_B^t \quad (2.9)$$

où  $\vec{E}_s^t$  et  $\vec{E}_B^t$  désignent les champs transmis à l'extérieur de la nanostructure.

### Relation entre l'état d'une boîte quantique et son dipôle moyen

Nous allons maintenant établir le lien entre le champ  $\vec{E}_B$  et l'état microscopique du système à un instant donné.

L'information est contenue dans la radiation émise par la boîte quantique. La grandeur microscopique qui induit cette radiation est le dipôle électrique de la boîte. En accord avec les règles de sélection optique [cf. figure 2.2 (a)], l'opérateur dipolaire s'écrit :

$$\hat{\vec{d}} = \hat{d}_+ \vec{e}_+^* + \hat{d}_- \vec{e}_-^*, \quad \begin{bmatrix} \hat{d}_+ \\ \hat{d}_- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_+ |T \downarrow\rangle \langle h \downarrow| \\ d_- |T \uparrow\rangle \langle h \uparrow| \end{bmatrix} \quad (2.10)$$

Notons que l'on considère que l'amplitude du dipôle électrique des deux transitions circulaires est la même :  $d_+ = d_- = d$ .

L'état de la boîte quantique à instant  $t$  est décrit dans le formalisme de la matrice densité  $\rho(t)$  [49], exprimée dans la base  $\{|h \downarrow\rangle, |h \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle, |T \uparrow\rangle\}$ . On déduit de la relation (2.10), la valeur moyenne  $\vec{D}(t)$  de l'observable dipolaire en fonction de l'état  $\rho(t)$  de la boîte quantique, à un instant  $t$  considéré :

$$D_{\pm}(t) = \langle \hat{d}_{\pm} \rangle (t) = Tr[\rho(t)\hat{d}_{\pm}]$$

$$= \langle h \downarrow | \rho(t) \hat{d}_{\pm} | h \downarrow \rangle + \langle h \uparrow | \rho(t) \hat{d}_{\pm} | h \uparrow \rangle + \langle T \downarrow | \rho(t) \hat{d}_{\pm} | T \downarrow \rangle + \langle T \uparrow | \rho(t) \hat{d}_{\pm} | T \uparrow \rangle \quad (2.11)$$

$$\begin{bmatrix} D_+ \\ D_- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d \langle h \downarrow | \rho(t) | T \downarrow \rangle + c.c. \\ d \langle h \uparrow | \rho(t) | T \uparrow \rangle + c.c. \end{bmatrix} \quad (2.12)$$

### Champ rayonné par un plan de boîtes quantiques

Sous l'effet de l'impulsion sonde, le dipôle électrique de la transition fondamentale est excité ( $D_{\pm} \neq 0$ ). Le champ électrique rayonné par un plan de boîtes<sup>3</sup>, induit par une distribution surfacique de polarisation électrique, s'exprime, à l'aide de l'équation (2.12), de la manière suivante :

$$\vec{E}_B = [E_{B+} \vec{e}_+ + E_{B-} \vec{e}_-] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.13)$$

$$\begin{bmatrix} E_{B+} \\ E_{B-} \end{bmatrix} = A \begin{bmatrix} \langle h \downarrow | \rho(t) | T \downarrow \rangle \\ \langle h \uparrow | \rho(t) | T \uparrow \rangle \end{bmatrix} \text{ avec } A = \frac{i}{2} \mu_0 c \omega d N_B^{2D} \quad (2.14)$$

où  $N_B^{2D}$  est la densité surfacique de boîtes quantiques.

### 2.3.2 Signal de dichroïsme circulaire, différences des populations

#### Signal de photodétection mesuré

Le champ total transmis  $\vec{E}_{transmis}^{tot}$  est composé de la réponse optique des boîtes  $\vec{E}_B$  et du champ sonde incident transmis  $\vec{E}_s^t$ . De l'équation (2.9), on déduit  $\vec{E}_{transmis}^{tot}$ , et ainsi la différence d'intensité  $\Delta I$  de ses deux composantes circulaires, en fonction de l'état de la boîte  $\rho(t)$  à un instant t.

$$\vec{E}_{transmis}^{tot} = \vec{E}_s^t + \vec{E}_B^t = [E_+(t) \vec{e}_+ + E_-(t) \vec{e}_-] e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.15)$$

$$\text{avec } E_{\pm}(t) = E_s^t(t) + E_{B\pm}^t(t), \quad E_s^t(t) = t_{10} t_{01} E_s(t) \text{ et } E_{B\pm}^t(t) = t_{01} E_{B\pm}(t)$$

Finalement :

$$\Delta I(t) \propto |E_+(t)|^2 - |E_-(t)|^2 = 2E_s^t(t) \text{Re}[E_{B+}^t - E_{B-}^t] \quad (2.16)$$

En ne retenant que les termes du premier ordre du champ électrique dû aux boîtes, on obtient en substituant (2.14) dans (2.16) :

$$\Delta I(t) \propto t_{01} d E_s^t(t) \text{Im}[\langle h \uparrow | \rho(t) | T \uparrow \rangle - \langle h \downarrow | \rho(t) | T \downarrow \rangle] \quad (2.17)$$

---

3. Nous ne considérons pas ici les effets liés à l'inhomogénéité, les boîtes quantiques du plan sont considérées identiques.

### Évolution de la matrice densité sous l'impulsion sonde

Nous avons établi, précédemment, la relation entre la réponse optique  $\vec{E}_B(t)$  d'un plan de boîtes quantiques et l'état du système<sup>4</sup>  $\rho(t)$  pendant l'impulsion sonde. La traduction explicite de l'évolution de la matrice densité  $\rho(t)$ , due à l'interaction entre une boîte et le champ sonde, permet d'établir une relation entre ce dernier et l'état du système  $\rho(\tau^-)$  juste antérieur au passage de l'impulsion sonde.

L'origine du temps est donnée par l'impulsion de pompe,  $\tau$  est le délai temporel entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde. On suppose que la largeur d'impulsion ( $\tau_p \sim 1\text{ps}$ ) est inférieure à tout autre temps caractéristique d'évolution du système. Le hamiltonien d'interaction entre le champ sonde  $t_{10}\vec{E}_s$  et une boîte quantique s'écrit<sup>5</sup> :

$$H_s = -\hat{d}.t_{10}\vec{E}_s = -dt_{10}E_s(|T \uparrow\rangle\langle h \uparrow| + |T \downarrow\rangle\langle h \downarrow|)e^{-i\omega t} + H.c. \quad (2.18)$$

L'évolution de la matrice densité  $\rho(t)$ , sous l'interaction avec l'impulsion sonde résonnante, se résout de manière exacte ; elle est donnée par la transformation unitaire suivante [50, 51, 48] :

$$\rho(t) = U(t)\rho(\tau^-)U^\dagger(t) \quad (2.19)$$

$$\text{avec } U(t) = \cos \frac{\Phi(t)}{2} \mathbb{1} - i \sin \frac{\Phi(t)}{2} [(|T \uparrow\rangle\langle h \uparrow| + |T \downarrow\rangle\langle h \downarrow|)] + H.c. \quad (2.20)$$

$$\text{où } \Phi(t) = \frac{2}{\hbar} dt_{10}E_0 \int_{-\infty}^t \eta(t' - \tau) dt'$$

On rappelle que  $t_{10}\vec{E}_s$  est le champ sonde incident à l'intérieur de l'échantillon (cf. figure 2.3). L'enveloppe  $E_s(t)$  est définie dans l'expression (2.8). A l'aide de l'opérateur d'évolution  $U(t)$ , on obtient l'expression des termes inter-niveaux de la matrice densité pendant l'impulsion sonde en fonction de l'état du système à l'instant  $\tau^-$  :

$$\langle h\sigma | \rho(t) | T\sigma \rangle = \cos^2 \frac{\Phi(t)}{2} \langle h\sigma | \rho(\tau^-) | T\sigma \rangle$$

$$+ \frac{i}{2} \sin \Phi(t) [\langle T\sigma | \rho(\tau^-) | T\sigma \rangle - \langle h\sigma | \rho(\tau^-) | h\sigma \rangle] + \sin^2 \Phi(t) \langle T\sigma | \rho(\tau^-) | h\sigma \rangle \quad (2.21)$$

avec  $\sigma = \uparrow$  ou  $\downarrow$ .

On suppose le temps de cohérence, entre les états excités et fondamentaux, inférieur au délai temporel d'observation  $\tau^-$ . En conséquence, les termes hors diagonaux  $\langle h\sigma | \rho(\tau^-) | T\sigma \rangle$  et  $\langle T\sigma | \rho(\tau^-) | h\sigma \rangle$  sont négligeables devant les termes de populations : seule la contribution proportionnelle à  $\sin \Phi(t)$  demeure dans l'expression (2.21).

4. Précisons que les boîtes du plan étant considérées identiques, chaque boîte est dans le même état  $\rho(t)$ .

5. Les dimensions caractéristiques d'une boîte ( $\sim 10\text{ nm}$ ) sont de deux ordres de grandeur inférieures à la longueur d'onde du champ électromagnétique ( $\simeq 1\text{ }\mu\text{m}$ ). On considère le champ électrique spatialement uniforme à l'échelle d'une boîte quantique.

En substituant l'équation (2.21) dans l'expression (2.17), on obtient la différence d'intensité  $\Delta I(t)$  en fonction de l'état juste  $\rho(\tau^-)$  antérieur au passage de l'impulsion sonde :

$$\Delta I(t) \propto t_{01} dE_s^t(t) \sin \Phi(t) [\Delta \rho_h - \Delta \rho_T] \quad (2.22)$$

avec

$$\begin{aligned} \Delta \rho_T &= \langle T \uparrow | \rho(\tau^-) | T \uparrow \rangle - \langle T \downarrow | \rho(\tau^-) | T \downarrow \rangle \\ \Delta \rho_h &= \langle h \uparrow | \rho(\tau^-) | h \uparrow \rangle - \langle h \downarrow | \rho(\tau^-) | h \downarrow \rangle \end{aligned} \quad (2.23)$$

$\Delta \rho_T$  et  $\Delta \rho_h$  sont, respectivement, les différences de populations de trions et de trous juste avant l'impulsion sonde.

Cependant, en dynamique pulsée, l'enveloppe du champ sonde dépend du temps et donc la quantité  $\Delta I$  aussi. Le signal effectivement mesuré est intégré dans le temps :  $\Delta I_{PCD} = \int_{-\infty}^{+\infty} \Delta I(t) dt$ . Avec

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \eta(t - \tau) \sin \Phi(t) dt = (1 - \cos \theta) \frac{\hbar}{2dt_{10}E_0} \quad (2.24)$$

où  $\theta = \frac{2t_{10}dE_0}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \eta(t - \tau) dt$  est l'aire de l'impulsion sonde ; le signal photodéecté s'écrit finalement :

$$\Delta I_{PCD} \propto N_B^{2D} t_{01} t_{10} (dE_0)^2 [\Delta \rho_h - \Delta \rho_T] \quad (2.25)$$

En conclusion, la mesure optique du dichroïsme circulaire photoinduit (DCP) est bien conforme à nos intuitions ; elle est proportionnelle : à l'intensité de la sonde, à la densité surfacique de boîtes quantiques, aux facteurs de transmission du matériau, et à la différence des populations des états photocréés et fondamentaux. C'est sur cette troisième caractéristique que repose tout l'intérêt de nos mesures de DCP dans un échantillon de boîtes quantiques dopées p, afin d'y étudier des effets de polarisation de spin des porteurs photocréés (trion) et résidents (trou).



# Chapitre 3

## Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs

### Sommaire

---

3.1	Origine, terme de contact et terme dipolaire . . . . .	<b>48</b>
3.1.1	Hamiltonien hyperfin . . . . .	48
3.1.2	Terme de contact, électron de conduction . . . . .	49
3.1.3	Un électron en interaction avec N noyaux . . . . .	51
3.2	Relaxation du spin de l'électron induite par l'interaction hyperfine . . . . .	<b>51</b>
3.2.1	Problématique . . . . .	52
3.2.2	Approche semi-classique sur un ensemble de boîtes . . . . .	52
3.2.3	Approche exacte sur une seule boîte . . . . .	57
3.2.4	Comparaison des deux modèles . . . . .	61
3.3	Couplage hyperfin entre un trou localisé et les noyaux . . . . .	<b>63</b>
3.3.1	États de valence mélangés . . . . .	63
3.3.2	Hamiltonien . . . . .	64

---

Le fort confinement des électrons et des trous dans les boîtes quantiques supprime les mécanismes de relaxation actifs lorsque les porteurs sont libres de se déplacer dans l'espace. En revanche, le confinement exalte l'interaction hyperfine entre un porteur de spin localisé et les noyaux environnants. En effet, la faible étendue spatiale de la fonction d'onde du porteur entraîne que celui-ci interagit avec un nombre limité de noyaux, contrairement au cas des matériaux massifs. La conséquence principale dans les boîtes dopées, où les interactions d'échange électron-trou se compensent dans l'état trion, est que l'interaction hyperfine devient alors le processus dominant la relaxation des porteurs de spin [3]. En l'absence d'un champ magnétique extérieur, l'orientation de spin des électrons est perdue en quelques centaines de ps, par interaction avec les noyaux de la matrice cristalline [10]. Le trou, pour lequel l'interaction hyperfine est moins efficace à cause de la symétrie p de sa fonction de Bloch, est mieux protégé de cette interaction.

Dans ce chapitre, nous introduisons les éléments et le formalisme nécessaires à la description de l'interaction électron-noyaux et trou-noyaux, dans les boîtes quantiques. Nous abordons cette interaction du point de vue de la relaxation de spin qu'elle induit sur les porteurs. Pour cela, nous nous appuyons sur deux modèles de natures différentes : le premier traite de la relaxation du spin électronique sur un ensemble de boîtes, le second aborde le phénomène de relaxation du spin d'un point de vue exact sur une boîte unique.

## 3.1 Origine, terme de contact et terme dipolaire

### 3.1.1 Hamiltonien hyperfin

Jusqu'à présent nous avons considéré le réseau cristallin comme un ensemble de noyaux chargés. En fait, les noyaux des semiconducteurs  $III-V$  possèdent un spin non nul (contrairement aux semi-conducteurs  $II-VI$ , où cela est vrai pour seulement quelques isotopes). Le moment dipolaire magnétique associé au spin nucléaire est  $\vec{\mu}_I = \frac{\mu_I}{I} \vec{I}$ , où  $\mu_I$  est le magnéton nucléaire de l'espèce considérée et  $\vec{I}$  désigne l'observable de spin correspondante.

Considérons un noyau particulier de la matrice cristalline et un électron délocalisé. L'électron se déplace dans le champ électrostatique du noyau (couplage spin-orbite), mais également dans le champ magnétique nucléaire  $\vec{B}_I$  créé par  $\vec{\mu}_I$ . Le comportement d'une charge  $q$  soumise à un champ magnétique s'obtient en remplaçant son impulsion  $\vec{p}$  par  $\vec{p} + \frac{q}{c} \vec{A}$ , et en tenant compte de l'énergie du couplage magnétique  $-\vec{\mu}_e \cdot \vec{B}_I$ .  $\vec{\mu}_e$  désigne le moment magnétique de l'électron, défini par :  $\vec{\mu}_e = -g_0 \mu_B \vec{S}$ , où  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr<sup>1</sup> et  $g_0$  le facteur de Landé de l'électron libre<sup>2</sup>.

---

1. Nous adoptons la convention où le magnéton de Bohr est toujours pris positif, indépendamment de la charge de la particule,  $\mu_B \simeq 5.79 \cdot 10^{-5} \text{ eV/T}$ .

2. Dans la matière, l'énergie d'interaction entre un champ uniforme et le moment électronique est proportionnelle au facteur de Landé effectif  $g_{eff}$  de l'électron. Ce n'est pas le cas pour l'énergie d'interaction entre le champ  $\vec{B}_I$  créé par les noyaux et l'électron. Comme il a été démontré par Y. Yafet [52], on doit

Le champ magnétique produit par le dipôle  $\vec{\mu}_I$ , en un point séparé par un vecteur  $\vec{r}$ , dérive du potentiel vecteur  $\vec{A}_I$  :

$$\vec{A}_I = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} \vec{\mu}_I \times \vec{r} \text{ et } \vec{B}_I = \nabla \times \vec{A}_I \quad (3.1)$$

En ne considérant que les termes linéaires en  $\vec{A}$ , on obtient pour l'hamiltonien d'interaction magnétique électron-noyau<sup>3</sup> :

$$H_{hf} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \left\{ \frac{-2\mu_B}{r^3} \vec{L} \cdot \vec{\mu}_I + \frac{1}{r^3} [3(\vec{\mu}_I \cdot \vec{e}_r)(\vec{\mu}_e \cdot \vec{e}_r) - \vec{\mu}_I \vec{\mu}_e] + \frac{8\pi}{3} \vec{\mu}_I \cdot \vec{\mu}_e \delta(\vec{r}) \right\} \quad (3.2)$$

où  $\vec{r}$  est le vecteur reliant la position du noyau à celle de l'électron et  $\vec{L}$  le moment cinétique orbital de l'électron ( $\vec{L} = \vec{r} \times \vec{p}/\hbar$ ). Cet hamiltonien agit, en tant qu'opérateur, à la fois dans l'espace de l'électron et dans celui du noyau.

- Le premier terme de  $H_{hf}$  représente l'interaction du moment magnétique nucléaire avec le champ magnétique créé au niveau du noyau par la rotation de la charge électronique (moment orbital de l'électron).
- Le second terme représente l'interaction dipôle-dipôle entre les moments magnétiques électronique et nucléaire, c'est-à-dire l'interaction du moment magnétique du spin de l'électron avec le champ magnétique créé par  $\vec{\mu}_I$  (ou vice versa).
- Le troisième terme, non nul en  $r = 0$  (lorsque les fonctions d'onde de l'électron et du noyau se recouvrent), appelé terme de contact de Fermi  $H_c$ , décrit l'interaction entre le spin de l'électron et le champ magnétique régnant à l'intérieur du noyau. Ce terme traduit le fait que le champ magnétique créé par  $\vec{\mu}_I$  n'a pas la même forme à l'intérieur du noyau qu'à l'extérieur de celui-ci (terme dipôle-dipôle).

**Remarque :** La description de cette interaction à partir des états quantifiés du rayonnement électromagnétique est faite dans la référence [27] (page 544). Le couplage hyperfin n'engendre pas de processus modifiant l'état du rayonnement entre l'état initial et l'état final. Le photon étant explicitement le médiateur de toute interaction électromagnétique, il est intéressant de noter que, de ce point de vue, l'interaction hyperfine se traduit par un échange de photons entre le noyau et l'électron. L'état du système en présence de photons émis ne peut constituer un état final ; c'est un état transitoire, ou parfois appelé "virtuel".

### 3.1.2 Terme de contact, électron de conduction

Pour un électron de conduction, le terme de contact de Fermi domine l'interaction hyperfine. Nous exprimons, ici, la forme effective de l'hamiltonien de contact pour un électron de conduction d'une boîte quantique.

utiliser le facteur de Landé de l'électron libre ( $g_0 = 2$ ).

3. Le calcul détaillé se trouve dans les références [53, 54].

En prenant la valeur moyenne sur les coordonnées orbitales de l'électron, on obtient un hamiltonien agissant uniquement sur les variables de spin :

$$\begin{aligned} \langle \varphi(\vec{r}) | H_c | \varphi(\vec{r}) \rangle &= \int \varphi(\vec{r})^* H_c \varphi(\vec{r}) d^3r \\ &= -\frac{2}{3} \mu_0 |\varphi(0)|^2 | \vec{\mu}_I \cdot \vec{\mu}_e \end{aligned} \quad (3.3)$$

où  $\varphi(\vec{r})$  représente la partie orbitale de la fonction d'onde de l'électron. En remplaçant les opérateurs de moments magnétiques par ceux de spin, l'interaction hyperfine prend la forme d'un hamiltonien de Heisenberg :

$$\frac{4}{3I} \mu_0 \mu_I \mu_B |\varphi(0)|^2 | \vec{S} \cdot \vec{I} \quad (3.4)$$

Dans le cristal semiconducteur, la fonction d'onde électronique est représentée par le produit d'une fonction enveloppe  $\Phi(\vec{r})$ , lentement variable à l'échelle d'une maille élémentaire, et d'une fonction de Bloch  $u(\vec{r})$  :  $\varphi(\vec{r}) = \Phi(\vec{r})u(\vec{r})$  (cf. chapitre 1). En raison de la symétrie  $p$  des états de valence ( $u_v(0) = 0$ ), l'interaction hyperfine de contact est négligeable pour ces états. En revanche, la symétrie  $s$  des états de conduction exalte le recouvrement de la fonction d'onde sur le site atomique. Le terme de contact est alors plus grand que le terme dipôle-dipôle. L'interaction hyperfine pour un électron de conduction est donc dominée par le terme de contact (nous le désignons par la suite  $H^e$ ).

### Constante hyperfine

On introduit la constante hyperfine  $A_\alpha^e$  définie sur une cellule unité, de volume  $\nu_0$  :

$$H^e = A^e \vec{S} \cdot \vec{I}, \text{ avec } A^e = A_\varepsilon^e |\Phi(0)|^2 \nu_0 \quad (3.5)$$

et  $A_\varepsilon^e = \frac{4}{3\nu_0} \mu_0 \mu_B \frac{\mu_\varepsilon^I}{I_\varepsilon} |u_\varepsilon(0)|^2$  où  $|u_\varepsilon(0)|^2$  est le carré de l'amplitude de la fonction de Bloch sur le site nucléaire d'élément  $\varepsilon$ . La valeur de la constante hyperfine dépend du matériau et du choix de la cellule unité. Dans la structure blende de zinc qui nous concerne ici, elle contient deux atomes. En prenant comme condition de normalisation sur la fonction de Bloch<sup>4</sup> :  $\int_{\nu_0} |u(\vec{r})|^2 d^3r = \nu_0$ , on estime pour la constante hyperfine [56, 3] :  $A_{In}^e = 56 \mu\text{eV}$ ,  $A_{As}^e = 46 \mu\text{eV}$  et  $A_{Ga}^e = 43 \mu\text{eV}$ .

### Remarque

La forme de Heisenberg que prend l'hamiltonien  $H^e$  rappelle la forme effective  $\propto \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2$  utilisée, par exemple, pour traiter le ferromagnétisme dans la matière. Cependant, si l'hamiltonien hyperfin est bien le résultat d'une interaction entre dipôles magnétiques, ce n'est pas le cas du ferromagnétisme. Il résulte de l'interaction électrostatique coulombienne entre les électrons et du principe d'exclusion de Pauli qui, bien que mettant en jeu le spin des particules, ne peut pas être considéré comme une interaction.

4. La fonction de Bloch est très piquée sur les sites nucléaires [55, 56], ce qui conduit à  $\frac{|u(0)|^2}{\nu_0} \sim 10^{25} \text{ cm}^{-3}$  pour les noyaux d'In, d'As et de Ga.

### 3.1.3 Un électron en interaction avec $N$ noyaux

Dans une boîte quantique d'InAs, l'électron interagit avec  $N \sim 10^5$  noyaux. Pour obtenir le hamiltonien total du système, il nous faut sommer toutes les interactions individuelles électron-noyaux :

$$H^e = \sum_j A_j^e \vec{S} \cdot \vec{I}^j \quad \text{avec} \quad A_j^e = A_\varepsilon^e |\Phi(\vec{r}_j)|^2 \nu_0 \quad (3.6)$$

où  $\vec{r}_j$  désigne la position du noyau  $j$  et  $\Phi(\vec{r}_j)$  est la valeur de la fonction enveloppe sur le site  $j$ .

Le nombre total de noyaux est proportionnel au volume  $V$  de la boîte quantique :  $N = 2\frac{V}{\nu_0}$ .

La densité électronique moyenne dans une boîte quantique est  $|\widetilde{\Phi}|^2 = \frac{2}{\nu_0 N}$ . En conséquence, le couplage moyen entre un électron de conduction et un noyau est  $\frac{2}{N}A_\varepsilon^e$ , inversement proportionnel à la taille de la boîte quantique.

#### Propriétés de l'hamiltonien

Avec un axe de quantification choisi suivant  $z$ , il est commode d'introduire les combinaisons linéaires suivantes :  $S_\pm = S_x \pm iS_y$ ,  $I_\pm^j = I_x^j \pm iI_y^j$ . L'expression de l'hamiltonien  $H^e$  devient ainsi :

$$H^e = \sum_j A_j^e (S_z I_z^j + \frac{S_+ I_-^j + S_- I_+^j}{2}) \quad (3.7)$$

- Cet hamiltonien conserve le moment cinétique de spin total du système  $\vec{F} = \vec{S} + \sum_j \vec{I}^j$  ( $[H^e, \vec{F}] = 0$ ).
- Le second terme, couramment appelé “flip-flop”, couple les opérateurs de création et d'annihilation de spin entre l'électron et les noyaux. Il est donc responsable du transfert de moment angulaire de spin entre l'électron et l'ensemble des noyaux de la boîte quantique. Ce terme requerra notre attention car il est à l'origine des phénomènes de relaxation de la polarisation du spin électronique, et de génération de la polarisation dynamique nucléaire.
- Le premier terme du hamiltonien n'induit pas de relaxation<sup>5</sup>, mais il est en revanche responsable du déplacement (Overhauser, Knight) des niveaux d'énergie de spin.

## 3.2 Relaxation du spin de l'électron induite par l'interaction hyperfine

Dans cette partie, nous discutons du rôle majeur joué par l'interaction hyperfine dans la relaxation de la polarisation électronique. Pour argumenter cette discussion, nous présentons deux modèles permettant de traiter cette relaxation.

---

5. Pour un électron polarisé suivant  $z$ .

### 3.2.1 Problématique

Le spin électronique est en contact avec un très grand nombre de noyaux. Le couplage hyperfin agit à la fois dans l'espace de l'électron et dans celui des noyaux. La dispersion de la fonction d'onde de l'électron dans la boîte quantique entraîne que celui-ci est couplé différemment avec chaque noyau. Le "petit" système que constituent les deux états de spin de l'électron est donc lié de manière multiple au "réservoir" de spins nucléaires.

Le problème est le suivant : comment calculer les observables liées au petit système ?

L'équation de Liouville ou d'Heisenberg permet d'obtenir l'évolution temporelle des observables. Néanmoins, en raison de la multiplicité des couplages entre les observables du système électronique et du réservoir, le problème se révèle être très complexe.

On peut se demander alors s'il n'est pas possible de réduire le très grand nombre d'équations de Heisenberg en un plus petit nombre, liées uniquement au système électronique. Sous la gouverne d'approximations sur le réservoir de spins nucléaires, c'est la démarche entreprise par I.A. Merkulov et coll. [3] pour traiter la relaxation du spin de l'électron.

### 3.2.2 Approche semi-classique sur un ensemble de boîtes

Le problème consiste à résoudre la dynamique de la polarisation de spin, induite par l'interaction hyperfine, sur un ensemble de boîtes, dont le spin électronique de chacune est initialement orienté suivant une direction privilégiée  $\vec{S}_0$ .

#### Hypothèses sur le réservoir

Du point de vue de l'électron, l'observable qui caractérise le réservoir de spins nucléaires est le champ effectif hyperfin  $\vec{B}_n$ . On le définit naturellement de la manière suivante :

$$H^e = g_e \mu_B \vec{S} \cdot \vec{B}_n \text{ où } \vec{B}_n = \frac{1}{g_e \mu_B} \sum_j A_j^e \vec{I}^j \quad (3.8)$$

Les observables de spin  $I_x, I_y, I_z$  ne sont pas simultanément mesurables, il en est de même pour les observables du spin nucléaire total  $\sum_j \vec{I}^j$  et du champ hyperfin  $\vec{B}_n$ . En raison du nombre élevé de noyaux, les fluctuations du champ hyperfin sont de grande amplitude. La moyenne quadratique  $\sigma_n$  quantifie cette fluctuation :

$$\begin{aligned} \sigma_n^2 &= \langle \vec{B}_n^2 \rangle - \langle \vec{B}_n \rangle^2 \\ &= \frac{1}{(g_e \mu_B)^2} \left[ \left\langle \left( \sum_j A_j^e \vec{I}^j \right)^2 \right\rangle - \left\langle \sum_j A_j^e \vec{I}^j \right\rangle^2 \right] \end{aligned} \quad (3.9)$$

#### Absence de polarisation nucléaire

On suppose la polarisation nucléaire nulle  $\langle \vec{I}^j \rangle = 0$ , ce qui entraîne que les corrélations

nucléaires sont également nulles :

$$\langle \vec{I}^j \cdot \vec{I}^k \rangle = \delta_{kj} \langle (\vec{I}^j)^2 \rangle = \delta_{kj} I^j(I^j + 1) \quad (3.10)$$

Avec cette hypothèse, l'expression (3.9) devient :

$$\sigma_n^2 = \frac{1}{(g_e \mu_B)^2} \sum_j (A_j^e)^2 I^j(I^j + 1) \quad (3.11)$$

La densité électronique moyenne dans une boîte quantique est  $|\widetilde{\Phi}|^2 = \frac{2}{\nu_0 N}$ , ce qui conduit à  $\widetilde{A}_j^e = \frac{2}{N} \sum_\varepsilon x_\varepsilon A_\varepsilon^e$  où la somme a lieu sur le type d'éléments nucléaires présents dans la boîte,  $\varepsilon = In, As, Ga$ ;  $x_\varepsilon$  est la composition chimique telle que  $\sum_\varepsilon x_\varepsilon = 1$ . On obtient pour l'amplitude des fluctuations du champ hyperfin :

$$\sigma_n^2 = \left(\frac{2}{g_e \mu_B}\right)^2 \frac{1}{N} \sum_\varepsilon x_\varepsilon (A_\varepsilon^e)^2 I^\varepsilon(I^\varepsilon + 1) \quad (3.12)$$

### Champ hyperfin statique

Dans l'approche de I. A. Merkulov et coll. [3], le champ hyperfin perçu par l'électron est traité comme un "vrai" champ magnétique classique.

Le caractère fluctuant du champ hyperfin est pris en considération de la manière suivante : Le champ hyperfin est spatialement distribué en amplitude et en direction sur les différentes boîtes de l'échantillon. Cela conduit chaque électron de chaque boîte à précesser autour d'un champ différent.

Le temps caractéristique de précession  $T_\sigma$  est relié à la moyenne quadratique des fluctuations du champ par :

$$T_\sigma = \frac{\hbar}{\mu_B |g_e| \sigma_n} = \hbar \left( \frac{N}{4 \sum_\varepsilon x_\varepsilon (A_\varepsilon^e)^2 I^\varepsilon(I^\varepsilon + 1)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.13)$$

Avec les paramètres suivants :  $N = 10^5$ ,  $A_\varepsilon^e \simeq 50 \mu\text{eV}$ ,  $|g_e| \simeq 0.5$ ,  $x_{Ga} \simeq x_{In}$ ,  $x_{As} = 0.5$ , on obtient  $T_\sigma \sim 1$  ns. L'estimation de ce temps est précieuse. En effet, l'hypothèse clé du modèle repose sur le fait que ce temps est très inférieur aux temps caractéristiques de la dynamique des spins nucléaires, à savoir :

- Le temps de précession  $T^e$  des noyaux dans le champ hyperfin de l'électron  $\vec{B}_e$  où  $T^e \sim \sqrt{N} T_\sigma$ . En effet,  $\vec{B}_e$  est le reflet de l'interaction entre un noyau et un unique électron, ce qui conduit à un couplage effectif environ  $\sqrt{N}$  fois plus petit<sup>6</sup>.
- Le temps caractéristique  $\tau$  de l'interaction dipôle-dipôle entre spins nucléaires,  $\tau \sim 0.1$  ms.

Le problème se ramène finalement à considérer la précession d'un ensemble d'électrons autour d'un champ statique distribué aléatoirement de boîte en boîte.

---

6. Avec  $H^e = -\sum_j \mu_j \vec{I}^j \cdot \vec{B}_e^j$ ,  $\vec{B}_e^j = -\frac{A_j^e \vec{S}}{\mu_I}$ , on déduit  $\sigma_e^2 \sim \left(\frac{2A^e}{N\mu_I}\right)^2$  et le temps de précession caractéristique  $T^e \sim \left(\frac{\hbar N}{A^e}\right)$ .

### Déphasage de la polarisation de spin électronique d'un ensemble de boîtes

On suppose que le champ hyperfin est distribué dans l'ensemble des boîtes suivant une densité de probabilité gaussienne<sup>7</sup> :

$$P(\vec{B}_n) = \frac{1}{(\frac{2}{3}\pi)^{\frac{3}{2}}\sigma_n^3} \exp\left[-\frac{3(\vec{B}_n)^2}{2\sigma_n^2}\right] = \frac{1}{\pi^{\frac{3}{2}}\Delta_n^3} \exp\left[-\frac{(\vec{B}_n)^2}{\Delta_n^2}\right] \quad (3.14)$$

où  $\Delta_n^2 = \frac{2}{3}\sigma_n^2$  qui, comme on le verra par la suite, est la grandeur caractéristique du problème. Le spin dans chacune des boîtes est initialement suivant  $\vec{S}_0$  ( $\vec{S}_0 = S_0\vec{e}_z$ ). L'évolution temporelle  $\vec{S}(t)$  d'un spin soumis à un champ  $\vec{B}_n$  est décrite par l'équation :

$$\frac{d\vec{S}(t)}{dt} = \vec{w}_n \times \vec{S}(t) \text{ avec } \vec{w}_n = \frac{ge\mu_B}{\hbar}\vec{B}_n \quad (3.15)$$

Pour un champ  $\vec{B}_n$  statique, l'équation du mouvement de  $\vec{S}(t)$  s'écrit :

$$\vec{S}(t) = (\vec{S}_0 \cdot \vec{n})\vec{n} + [\vec{S} - (\vec{S}_0 \cdot \vec{n})\vec{n}] \cos \omega_n t - (\vec{S}_0 \times \vec{n}) \sin \omega_n t \quad (3.16)$$

avec  $\vec{n} = \frac{\vec{B}_n}{B_n}$ . Le spin de l'électron injecté dans chaque boîte précesse de manière cohérente autour du champ. L'évolution du spin moyen  $\langle \vec{S}(t) \rangle$  sur l'ensemble des boîtes quantiques est donnée par :

$$\langle \vec{S}(t) \rangle = \int \vec{S}(t) P(\vec{B}_n) d^3\vec{B}_n \quad (3.17)$$

On obtient finalement pour la composante suivant  $\vec{S}_0$  :

$$\langle S_z(t) \rangle = \frac{S_0}{3} \left\{ 1 + 2\left[1 - 2\left(\frac{t}{2T_\Delta}\right)^2\right] \exp\left[-\left(\frac{t}{2T_\Delta}\right)^2\right] \right\} \text{ avec } T_\Delta = \frac{\hbar}{\mu_B g_e \Delta_n} \quad (3.18)$$

Cette équation est très probante. Chaque électron, précessant autour d'un champ différent, se déphase avec le temps par rapport aux autres ; ainsi la polarisation moyenne électronique sur l'ensemble diminue. Le temps caractéristique de ce déphasage est  $T_\Delta \sim 1$  ns. Ce qui, au regard des temps caractéristiques des autres mécanismes de relaxation (basés sur le couplage spin-orbite), en fait le processus dominant la relaxation du spin électronique en l'absence de champ magnétique appliqué.

Par ailleurs, il est remarquable que la relaxation du spin soit partielle (voir figure 3.1) : 2/3 de la polarisation relaxe, le tiers restant est conservé. Ceci rend compte de l'équiprobabilité de l'orientation du champ  $\vec{B}_n$  ; on peut le comprendre avec une image simple. Pour 2/3 des boîtes,  $\vec{B}_n$  est essentiellement transverse au spin initial  $\vec{S}_0$ . Pour ce sous-ensemble, le spin moyen  $\langle \vec{S} \rangle$  relaxe vers 0 en un temps  $T_\Delta$ . A l'inverse, pour le tiers 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 de ces deux sous-ensembles, on trouve bien que  $\langle \vec{S} \rangle \rightarrow \frac{\vec{S}_0}{3}$  en un temps typique  $T_\Delta$ .

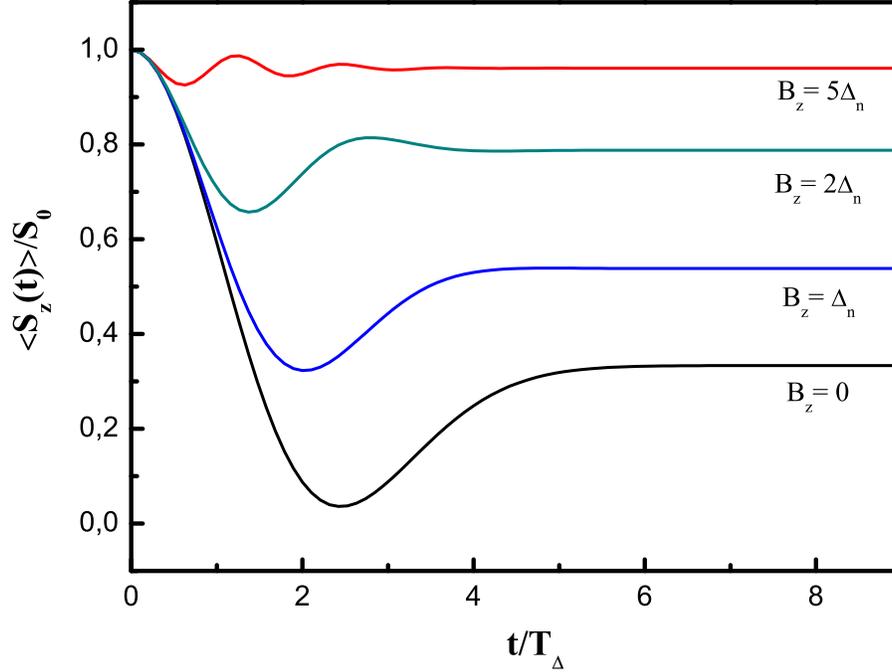


FIGURE 3.1: Comportement temporel de la polarisation de spin d'électron suivant  $z$ , d'un ensemble de boîtes  $\langle S_z(t) \rangle / S_0$ , pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué. Courbes calculées avec  $\Delta_n = 50$  mT,  $T_\Delta = 500$  ps, et un champ appliqué suivant la polarisation initiale de spin  $\vec{S}_0 = S_0 \vec{e}_z$ .

### Maintien du spin en présence d'un champ magnétique extérieur

Le champ extérieur est un paramètre pertinent du point de vue de l'interaction hyperfine. En effet, on constate sur la figure 3.1 que la polarisation de spin est maintenue pour un champ appliqué supérieur à  $\Delta_n$  (50 mT). Le champ appliqué, suivant la direction initiale de la polarisation, écran le champ hyperfin. Si le champ appliqué est suffisamment fort, les spins se trouvent donc protégés de l'interaction hyperfine et la polarisation demeure constante.

Précisons que la résolution de la dynamique des spins, en présence d'un champ magnétique appliqué, s'obtient en remplaçant  $\vec{B}_n$  par  $\vec{B}_n + \vec{B}_{\text{appliqué}}$  dans l'équation (3.16).

### Mise en évidence expérimentale du mécanisme

Nous commentons, dans cette section, les résultats de P.-F. Braun et coll. [10] obtenus en 2005 sur un ensemble de boîtes d'InAs dopées p. Ces résultats constituent la première preuve expérimentale de la relaxation du spin électronique induite par l'interaction hyperfine sur un ensemble de boîtes quantiques.

7.  $P(\vec{B}_n)$  est le produit de trois distributions  $P_i = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{1}{2}} \sigma_i} \exp[-\frac{B_i^2}{2\sigma_i^2}]$  avec  $i = x, y, z$  et  $\sigma_i^2 = \frac{1}{3}\sigma_n^2$ .

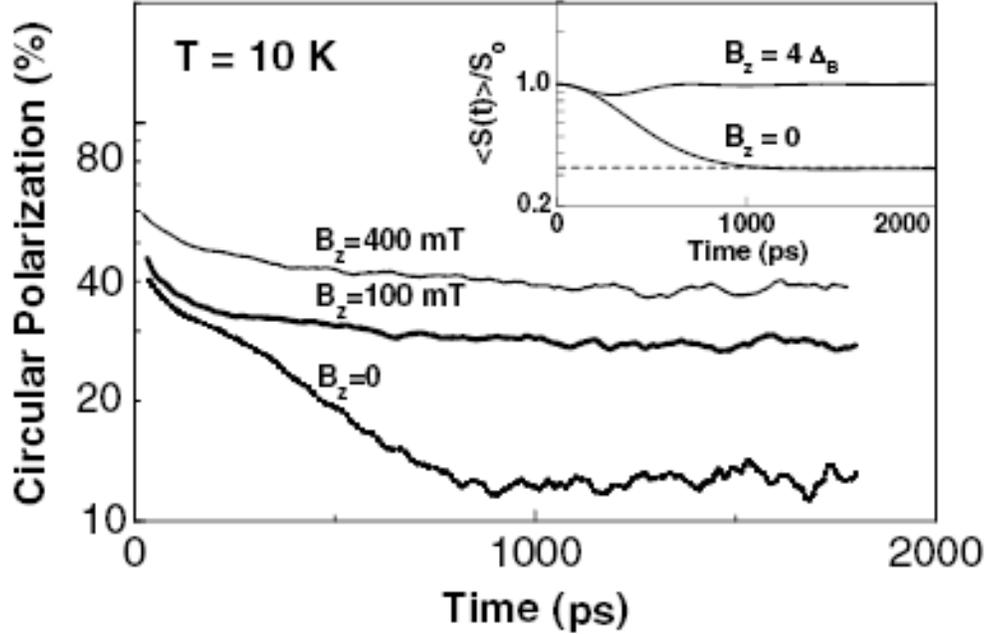


FIGURE 3.2: *Comportement temporel de la polarisation circulaire de la photoluminescence d'un échantillon de boîtes quantiques dopées p, pour différents champs appliqués. L'excitation impulsionnelle, polarisée circulairement, est à plus haute énergie, dans la couche de mouillage. La figure en encart est le résultat d'une simulation avec la prise en compte d'une dispersion sur le nombre de noyaux par boîte quantique. Figure issue de la référence [10].*

La figure 3.2 présente les résultats d'une expérience de luminescence résolue en temps, pour différents champs magnétiques appliqués, sur un échantillon de boîtes quantiques dopées p. La polarisation circulaire  $P_c(t) = 2\langle S_z(t) \rangle$  est obtenue en faisant la différence sur la somme des intensités de luminescence co-polarisée et contra-polarisée par rapport à la polarisation circulaire de l'impulsion d'excitation. Le taux de polarisation est celui de l'électron dans l'état trion  $X^+$  photocréé.

Sur la courbe sans champ magnétique appliqué, on observe deux régimes temporels : un déclin de la polarisation sur environ 700 ps, suivi d'un plateau stable sur la durée accessible à la mesure. Conformément<sup>8</sup> aux prédictions de I.A. Merkulov et coll., la polarisation du plateau (12 %) est le tiers de la polarisation initiale ( $\sim 40\%$ ).

L'évolution de la polarisation en fonction du champ magnétique appliqué est également une preuve concluante de la manifestation du mécanisme hyperfin. En effet, le champ appliqué gèle notablement la relaxation, dès 100 mT. Pour des champs supérieurs à 400 mT, la pola-

8. Précisons que le creux de la polarisation, manifeste vers  $2T_\Delta$ , n'est pas observé. L'explication repose sur la dispersion du nombre de noyaux par boîte dans l'échantillon, ce dont rend compte la simulation de la figure 3.2.

risation conserve pratiquement son niveau initial<sup>9</sup>. La simulation en encart de la figure 3.2 permet aux auteurs d'estimer le temps caractéristique de relaxation à  $T_{\Delta} = 470$  ps.

### Bilan

Le mécanisme proposé par I. A. Merkulov et coll. est très satisfaisant pour décrire la dynamique de spin de l'électron de conduction d'un ensemble de boîtes. Néanmoins plusieurs interrogations demeurent.

Si, sur un ensemble de boîtes, le mécanisme de relaxation se traduit comme un déphasage des fréquences de précession des électrons, qu'en est-il sur une seule boîte ? On pourrait invoquer le principe ergodique : toutes les configurations prises dans l'espace par le champ hyperfin sont satisfaites dans le temps sur une seule boîte, mais cela n'est pas satisfaisant. En effet, l'hypothèse fondatrice du modèle repose sur le gel du champ hyperfin bien au-delà de  $T_{\Delta}$ . Comment alors imaginer une dynamique de relaxation de cet ordre de temps sur une seule boîte ?

Un autre élément du modèle soulève un questionnement. Le traitement classique du champ hyperfin entraîne que chaque électron précesse de manière cohérente autour de celui-ci. Sur un ensemble de boîtes, cela induit, sans champ magnétique appliqué, que les composantes transverses de la polarisation de spin sur l'ensemble,  $\langle S_x \rangle$  et  $\langle S_y \rangle$ , oscillent puis s'amortissent [3]. On peut se demander si ces termes de cohérence ( $\langle S_x \rangle, \langle S_y \rangle$ ) induits par l'interaction hyperfine ont une réalité physique ou non.

Nous tentons d'approfondir cette réflexion dans la partie suivante.

### 3.2.3 Approche exacte sur une seule boîte

Nous présentons ici un modèle traitant de la relaxation hyperfine sur une seule boîte [57]. Ce modèle permet d'apporter des éléments de réponse au questionnement soulevé dans la partie précédente, notamment sur la dynamique de relaxation sur une boîte unique et la validité du traitement classique du champ hyperfin. Nous faisons, ensuite, le lien entre les deux approches, puis nous discutons de l'intérêt d'utiliser l'une ou l'autre des modélisations.

### Hypothèses

Le modèle proposé par G. G. Kozlov [57] est basé sur la résolution exacte de l'hamiltonien hyperfin. La méthode est décrite en détail dans l'annexe A. Nous en présentons ici les grandes lignes.

Pour éviter la multiplicité des couplages due à la dispersion de la fonction d'onde (cf. section 3.2.1), le problème est simplifié en supposant la fonction d'onde électronique homogène ( $|\Phi(\vec{r})|^2 = \text{cst}$ ). En conséquence, le couplage hyperfin est indépendant de la position des

---

9. En revanche, on observe que la polarisation initiale  $S_0$  augmente avec le champ  $B_z$ . Ceci est dû au gel des mécanismes de relaxation de spin pendant la thermalisation de l'électron jusqu'au niveau fondamental de trion.

noyaux à l'intérieur de la boîte quantique. Les noyaux sont supposés de spin 1/2 et de la même espèce.

Le hamiltonien hyperfin, en présence d'un champ magnétique<sup>10</sup>  $B_z$ , s'écrit :

$$H^e = \hbar\omega S_z + \sum_j A_j^e \vec{S} \cdot \vec{I}^j \quad \text{avec } A_j^e = A_\varepsilon^e |\Phi(\vec{r}_j)|^2 \nu_0 \quad \text{et } \hbar\omega = \mu_B g_e B_z \quad (3.19)$$

Compte tenu des hypothèses, le hamiltonien hyperfin se simplifie de la manière suivante :

$$H^e = \hbar\omega \cdot S + A \vec{S} \cdot \vec{I} \quad \text{avec } A = A_\varepsilon^e = A^e |\Phi|^2 \nu_0 = cst \quad (3.20)$$

où  $\vec{I} = \sum_{j=1}^{j=N} \vec{I}^j$  est l'opérateur de spin nucléaire total, et  $A$  est la constante de couplage hyperfin homogène.

### Base des états

Contrairement à la modélisation semi-classique, les systèmes électronique et nucléaire sont quantifiés.

Le hamiltonien dépend uniquement du spin nucléaire total  $\vec{I}$ . Il est donc commode de décrire le système nucléaire dans une base propre des opérateurs  $I^2$  et  $I_z$  :  $|J, L\rangle$  où  $J$  est le nombre quantique relatif du moment total tel que  $\langle I^2 \rangle = J(J+1)$ , et  $L$  la projection du moment total suivant  $z$ . La base devient complète lorsqu'on y ajoute les états du spin électronique par le produit tensoriel suivant :

$$|S_z\rangle \otimes |J, L\rangle \equiv |S_z, J, L\rangle \quad (3.21)$$

avec  $S_z = \pm \frac{1}{2}$ ,  $L = J, J-1, \dots, -J$ , et avec un nombre de noyaux pair  $N$ ,  $J = 0, 1, \dots, \frac{N}{2}$

### Hamiltonien diagonal par blocs

Dans cette base, les états sont uniquement couplés deux à deux par les termes transverses du hamiltonien :

$$|-\frac{1}{2}, J, L\rangle \leftrightarrow |\frac{1}{2}, J, L-1\rangle \quad (3.22)$$

Avec ces considérations, et en ordonnant de manière adéquate la base des états, le hamiltonien  $H^e$  est diagonal par blocs à deux dimensions (cf. annexe A). La brique élémentaire  $H_{JL}^e$  s'écrit dans la sous-base  $(|-\frac{1}{2}, J, L\rangle, |\frac{1}{2}, J, L-1\rangle)$  :

$$H_{JL}^e = \begin{bmatrix} -(\hbar\omega + AL)/2 & \frac{A}{2} \sqrt{J(J+1) - L(L-1)} \\ \frac{A}{2} \sqrt{J(J+1) - L(L-1)} & (\hbar\omega + A(L-1))/2 \end{bmatrix} \quad (3.23)$$

avec  $L = J, J-1, \dots, -J+1$ .

10. On néglige le terme Zeeman sur les noyaux devant celui de l'électron :  $\frac{g_e \mu_B}{\mu_I} \sim 500$ .

### Évolution temporelle du système

Les simplifications précédentes permettent de calculer la dynamique du système total simplement (les subtilités sont présentées en annexe A).  $H^e$  étant diagonal par blocs, le problème se résume à traiter l'évolution du sous-système élémentaire  $H_{JL}^e$  à deux dimensions par l'équation de Liouville :

$$i\hbar\dot{\rho}_{JL} = [H_{JL}, \rho_{JL}] \quad (3.24)$$

où  $\rho_{JL}$  est la matrice densité associée au bloc élémentaire  $H_{JL}^e$ . La solution étant analytique, on reconstruit ainsi la matrice densité totale  $\rho$  du système (cette étape est en revanche numérique). Les observables nucléaires et électroniques sont ensuite extraites par la trace des opérateurs :

$$\begin{aligned} \langle S_i(t) \rangle &= Tr[\rho(t)S_i] \\ \langle I_i(t) \rangle &= Tr[\rho(t)I_i] \quad |i=x,y,z \end{aligned} \quad (3.25)$$

Précisons que les solutions étant numériques, le temps de calcul dépend du nombre de noyaux considérés.

### Dynamique du spin de l'électron de conduction dans une boîte unique

Le cas particulier qui nous intéresse ici, se résout analytiquement. En effet, sans champ appliqué et en considérant un système nucléaire non polarisé, on obtient pour la composante  $S_z$  suivant la direction d'initialisation [57] :

$$S_z(t) = \frac{S_0}{3} \left\{ 1 + 2\left[1 - N\left(\frac{At}{2\hbar^2}\right)^2\right] \exp\left[-N\left(\frac{At}{2\sqrt{2}\hbar^2}\right)^2\right] \right\} \text{ avec } \vec{S}(0) = S_0\vec{e}_z \quad (3.26)$$

En prenant comme valeur constante de la fonction d'onde la valeur moyenne  $|\widetilde{\Phi}|^2 = \frac{2}{\nu_0 N}$ , on obtient pour la constante de couplage hyperfin homogène (cf. expression (3.20)) :  $A = A^e |\widetilde{\Phi}|^2 \nu_0 = \frac{2A^e}{N}$ .

En posant  $T_1 = \frac{\hbar}{A^e} \sqrt{\frac{N}{2}}$ , l'expression (3.26) devient :

$$S_z(t) = \frac{S_0}{3} \left\{ 1 + 2\left[1 - 2\left(\frac{t}{2T_1}\right)^2\right] \exp\left[-\left(\frac{t}{2T_1}\right)^2\right] \right\} \quad (3.27)$$

Ce résultat est remarquable : cette expression est identique à celle obtenue avec le modèle semi-classique sur un ensemble de boîtes [cf. expression (3.18)].

Avant de conclure, comparons formellement le temps  $T_1$  obtenu par la méthode exacte, avec le temps  $T_\Delta$  obtenu par la méthode semi-classique. Nous avons défini, dans la partie précédente,  $T_\Delta$  de la manière suivante :

$$T_\Delta = \frac{\hbar}{\mu_B g_e \Delta_n} = \hbar \left( \frac{3N}{8 \sum_\alpha x_\alpha (A_\alpha^e)^2 I^\alpha (I^\alpha + 1)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.28)$$

Dans l'approche exacte, la dynamique est résolue avec une seule espèce nucléaire, de spin 1/2, par boîte quantique :  $x_\alpha = 1$ ,  $A_\alpha^e = A^e$ . Avec ces mêmes conditions on obtient pour le

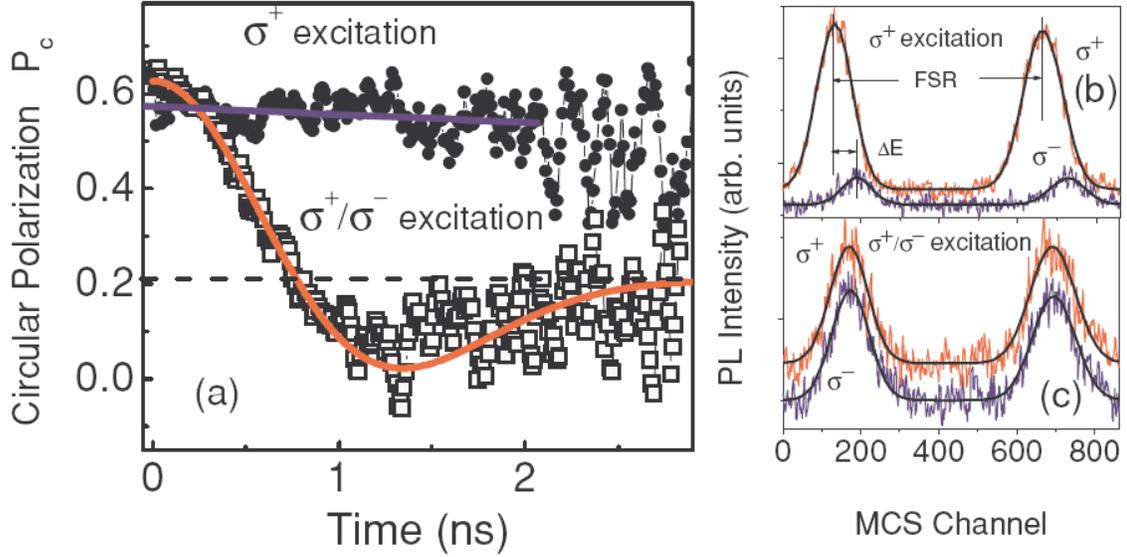


FIGURE 3.3: Résultats sur une boîte unique dopée p. (a) Polarisation circulaire de la photoluminescence résolue en temps sous excitation circulaire alternée  $\sigma^+/\sigma^-$  (carrés) et constante  $\sigma^+$  (ronds). Spectres de luminescence dans le cas de la polarisation alternée (c) et constante (b). Sur la figure (b), la séparation en énergie  $\Delta E$  témoigne de la présence du champ Overhauser qui en retour écranthe la relaxation du trion  $X^+$  (figure (a), points ronds). Les énergies d'excitation et d'émission sont respectivement 1.375 et 1.338 eV (elles sont séparées d'un phonon LO). Figures issues de la référence [11].

temps de déphasage  $T_\Delta$  précédent :

$$T_\Delta = \frac{\hbar}{A^e} \sqrt{\frac{N}{2}} = T_1 \quad (3.29)$$

Les dynamiques de spin calculées suivant  $\vec{e}_z$  sont donc identiques dans les deux approches. Avant de comparer plus finement les deux approches, nous présentons un résultat expérimental qui confirme les conclusions de cette partie.

### Mise en évidence expérimentale

La preuve expérimentale de l'observation d'une telle dynamique de relaxation de spin sur boîte unique a été apportée récemment par X. M. Dou et coll. [11]. Leur expérience de photoluminescence résolue en temps est menée sur une boîte d'InAs dopée p, sans champ magnétique appliqué.

On constate, sur la figure 3.3, que tous les ingrédients de la relaxation prévus par les modélisations sont présents :  $T_{\Delta,1} \simeq 550$  ps, la polarisation marque un creux pour un temps  $\simeq 2T_{\Delta,1}$ , puis finalement sature au tiers (20 %) de sa valeur initiale (60 %). La similitude avec les résultats de P.-F. Braun et coll. sur un ensemble de boîtes (cf. 3.2.2) est marquante.

Hormis l'absence du creux due à l'inhomogénéité sur l'ensemble des boîtes, les dynamiques de relaxation de spin électronique sont identiques, aussi bien dans le comportement temporel qu'au niveau du temps caractéristique ( $T_{\Delta,1} \simeq 470$  ps sur ensemble [10]).

### 3.2.4 Comparaison des deux modèles

#### Similitudes

Le comportement temporel et le temps caractéristique de la dynamique de spin suivant la direction d'initialisation ( $\vec{e}_z$ ) sont identiques dans les deux approches. Ce qui peut être perçu comme un déphasage dans un environnement nucléaire statique, dans le modèle sur ensemble, traduit en réalité un mécanisme de relaxation individuel du spin dans chaque boîte, dans le modèle exact.

Cependant, si conceptuellement les deux approches semblent différentes, l'identité des dynamiques de spin reflète un point de départ commun : la dispersion de la fonction de l'électron n'est pas prise en compte. Le champ nucléaire statique du modèle de I. A. Merkulov et coll. correspond à l'hypothèse du couplage homogène dans le modèle de G. G. Kozlov.

Cette hypothèse d'homogénéité permet de traiter de manière très satisfaisante la dynamique "rapide" de la relaxation de l'électron. En revanche, les phénomènes liés au changement<sup>11</sup> de configuration nucléaire sont ignorés. Ces processus conduisent à une relaxation supplémentaire de l'électron dans un temps bien supérieur à  $T_{\Delta,1}$  [9, 15, 14]. Avec l'appui de résultats expérimentaux, nous abordons ce point dans le chapitre 5.

#### Différences

Les deux modèles divergent au niveau de la dynamique des composantes de spin  $S_x$  et  $S_y$ , transverses à la direction d'initialisation  $\vec{e}_z$ . Dans le modèle sur ensemble, on observe une oscillation puis un amortissement vers zéro des composantes  $S_x$  et  $S_y$  [3]. Ce point suscite un certain questionnement (cf. 3.2.1). En effet, dans l'approche exacte, lorsque les composantes transverses sont initialement nulles, elles le demeurent pour tout temps. Le spin de l'électron n'oscille pas en présence du couplage hyperfin. Si les termes hors diagonaux de la matrice (3.23) traduisent bien une oscillation cohérente, cela concerne les états électron-noyaux  $|S_z, J, L\rangle$ . En effet, la matrice densité totale du système possède la même structure que le hamiltonien : diagonale par blocs à deux dimensions (cf. annexe A) où seules les termes de cohérence entre les états  $|\frac{1}{2}, J, L\rangle$  et  $|\frac{1}{2}, J, L-1\rangle$  sont non nuls. En conséquence, la matrice densité électronique, issue de la trace partielle de la matrice densité totale, est diagonale dans la base  $\{|S_z = -\frac{1}{2}\rangle, |S_z = \frac{1}{2}\rangle\}$ .

L'origine de cette différence provient du fait de considérer le champ hyperfin comme un

---

11. Par exemple, considérons deux noyaux où la fonction d'onde électronique est différente sur chaque site nucléaire. Une succession de processus "flip-flop" peut conduire à échanger le spin des deux noyaux, tout en conservant le spin électronique; la configuration de l'ensemble des spins nucléaires perçue par l'électron est alors modifiée.

champ magnétique réel<sup>12</sup> dans le modèle de Merkulov. La dynamique non nulle de  $S_x$  et  $S_y$  qui en découle ne semble pas contenir de réalité physique.

### Choix d'utilisation

Le modèle exact permet de calculer les observables de spin électroniques et nucléaire. Cela ouvre la possibilité de tenir compte de l'accumulation de spin électronique vers le système nucléaire, après chaque impulsion d'excitation. On peut ainsi modéliser les effets de polarisation dynamique nucléaire et la polarisation du spin électronique de manière auto-cohérente. Les effets liés à la polarisation des noyaux sont discutés dans le chapitre 6.

Cependant, la prise en compte du champ magnétique appliqué et de la répétition des impulsions d'excitation, se révèle coûteuse en temps de calcul, ce qui limite la modélisation à un nombre restreint de noyaux par boîte quantique.

En revanche, si le modèle de Merkulov et coll. ne permet pas de calculer la dynamique nucléaire, il est numériquement rapide. De plus, c'est un modèle très souple, qui permet de traiter conjointement la dynamique de spin des espèces photocréée et résidente dans les boîtes quantiques. Nous verrons au chapitre suivant la mise en oeuvre de ce modèle pour décrire la dynamique de spin dans notre système de boîtes dopées p.

### Conclusion

A travers les deux approches, l'interaction hyperfine apparaît comme un mécanisme de relaxation majeur du spin de l'électron de conduction dans les boîtes quantiques. Les résultats expérimentaux des références [10, 11], apportent une preuve expérimentale claire de ce mécanisme, qui se manifeste sur un temps caractéristique  $T_{\Delta,1} \simeq 500$  ps. Un champ magnétique appliqué permet de geler ce mécanisme et de protéger ainsi l'observable de spin électronique de la relaxation. Cependant, en l'absence de champ magnétique, l'interaction hyperfine limite l'utilisation du spin de l'électron de conduction comme support d'information. Une stratégie prometteuse peut être de coder l'information sur un autre support. La symétrie p de la fonction de Bloch du trou de valence annule le terme de contact de l'interaction hyperfine. En conséquence, le spin du trou devrait être mieux protégé des mécanismes de relaxation et de décohérence liés à l'interaction hyperfine. C'est dans cette optique que s'inscrit le travail de thèse présenté ici. La dernière partie de ce chapitre est donc consacrée à la description de l'interaction hyperfine entre les noyaux et le trou, à l'intérieur d'une boîte quantique.

---

12. On peut s'en convaincre simplement. En négligeant le terme Zeeman sur les noyaux, un champ magnétique transverse couple les états  $|\frac{1}{2}, J, L\rangle \leftrightarrow |-\frac{1}{2}, J, L\rangle$ , par réduction sur les états électroniques, un terme de cohérence apparaît. En revanche, ce n'est pas le cas pour l'interaction hyperfine qui couple les états  $|\frac{1}{2}, J, L\rangle \leftrightarrow |-\frac{1}{2}, J, L-1\rangle$ ; la trace partielle fait ici disparaître toute cohérence sur les états électroniques.

### 3.3 Couplage hyperfin entre un trou localisé et les noyaux

Bien que le terme de contact soit nul pour un trou, l'interaction hyperfine de celui-ci avec les noyaux n'est pas pour autant négligeable. A travers l'étude expérimentale de la polarisation de spin du trou, dans des boîtes quantiques dopées p, différents aspects de cette interaction sont considérés dans cette thèse. Nous présentons ici la forme effective de l'hamiltonien d'interaction hyperfine entre le trou et les noyaux dans une boîte quantique. Le couplage trou-noyaux est dominé par les deux autres termes de l'hamiltonien (3.2), qui, comme nous le verrons dans cette partie, conduisent à une interaction d'un ordre de grandeur plus faible que pour l'électron de conduction.

L'hamiltonien d'interaction entre un électron de valence, avec une fonction de Bloch de symétrie p, et un noyau du système cristallin s'écrit :

$$H_{hf} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \left\{ \frac{-2\mu_B}{r^3} \vec{L} \cdot \vec{\mu}_I + \frac{1}{r^3} [3(\vec{\mu}_I \cdot \vec{e}_r)(\vec{\mu}_e \cdot \vec{e}_r) - \vec{\mu}_I \cdot \vec{\mu}_e] \right\} \quad (3.30)$$

Plusieurs expériences récentes ont mis en évidence le caractère mélangé des états de valence entre les états de trous lourds et légers dans les boîtes quantiques [58, 59, 13, 60, 61]. Le hamiltonien de couplage hyperfin avec un trou lourd et avec un trou léger n'a pas la même structure. Le premier est de type Ising ( $I_z S_z$ ) et n'entraîne pas de relaxation du spin suivant l'axe de croissance  $\vec{e}_z$ . En revanche, le couplage hyperfin avec un trou léger possède des termes transverses permettant le transfert de moment cinétique entre le spin du trou et les noyaux [62]. Pour ne pas omettre des termes susceptibles d'influer sur la dynamique de spin du trou, il nous faut considérer l'effet de ces deux contributions hyperfines sur un état de trou mélangé.

La description du hamiltonien (3.30) pour un état de trou mélangé, en interaction avec  $N$  noyaux, est décrite en détail dans la référence [63]. Nous en présentons ici les formules principales, que nous utiliserons par la suite.

#### 3.3.1 États de valence mélangés

Le mélange des états de valence provient de l'anisotropie de la boîte, qui peut être induite par les contraintes ou la forme. Par exemple, la réduction des symétries du potentiel de confinement entraîne un mélange des états de valence qui se traduit à travers les termes hors diagonaux de l'hamiltonien de Luttinger-Kohn. La formation des boîtes d'InAs est obtenue en faisant croître une couche d'InAs sur du GaAs massif. Les boîtes se créent lorsque la couche d'InAs, fortement contrainte, relaxe. Cependant, les contraintes ne sont relaxées que partiellement et de manière anisotrope. Les contraintes anisotropes, demeurant dans les boîtes quantiques, induisent un mélange et un changement d'énergie des états de valence. Pour les boîtes plates et faiblement allongées, nous supposons que l'anisotropie des

contraintes est la source principale du mélange.

En raison de la forte séparation en énergie (imposée par le couplage spin-orbite,  $\sim 300$  meV) des niveaux issus de la bande  $\Gamma_7$ , nous considérons uniquement le mélange entre les états de moment cinétique total  $J = 3/2$  (bande  $\Gamma_8$ ).

Pour rester fidèle aux références citées, la notation utilisée par la suite correspond aux états électroniques de valence. On note  $\varphi_{\pm 3/2}$  les états de trous lourds  $|\frac{3}{2}, \pm\frac{3}{2}\rangle$  et  $\varphi_{\pm 1/2}$  les états de trous légers  $|\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$ . En considérant uniquement les contraintes dans le plan  $(x, y)$ , le hamiltonien incluant l'effet de ces dernières s'écrit dans la base  $\{\varphi_{+3/2}, \varphi_{-1/2}, \varphi_{-3/2}, \varphi_{+1/2}\}$  [38, 63] :

$$\begin{bmatrix} \Delta & -R & 0 & 0 \\ -R^* & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta & -R^* \\ 0 & 0 & -R & 0 \end{bmatrix} \quad (3.31)$$

où  $R = -\frac{\sqrt{3}}{2}b_v(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) + id_v\epsilon_{xy}$ ;  $b_v$  et  $d_v$  sont les potentiels de déformation. Le symbole  $\epsilon$  désigne le tenseur des déformations, lié de manière univoque au tenseur des contraintes  $\sigma$ . La séparation énergétique entre les états lourds et légers, induite par le confinement et les contraintes bi-axiales, est notée  $\Delta$ .

La diagonalisation de la matrice (3.31) conduit à deux valeurs propres de l'énergie :

$$E^\pm = \frac{1}{2}(\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + |R|^2}) \quad (3.32)$$

À chaque valeur propre sont associés deux états propres de trous mélangés. Les états de valence qui participent à la transition optique fondamentale sont ceux de plus haute énergie  $E^+$  (états de trous lourds modifiés) :

$$\begin{aligned} \tilde{\varphi}_{+3/2} &= \frac{1}{\sqrt{1+|\beta|^2}}(\varphi_{+3/2} + \beta\varphi_{-1/2}) \\ \tilde{\varphi}_{-3/2} &= \frac{1}{\sqrt{1+|\beta|^2}}(\varphi_{-3/2} + \beta^*\varphi_{+1/2}) \end{aligned} \quad (3.33)$$

avec  $\beta = |\beta| e^{i\phi} = i\frac{d_v\epsilon_{xy}}{\Delta} + \frac{\sqrt{3}}{2}\frac{b_v(\epsilon_{xx}-\epsilon_{yy})}{\Delta}$ . Nous verrons, au prochain chapitre que l'étude de la dynamique du spin du trou nous permet d'estimer ce coefficient  $|\beta|$  de mélange lourd-léger. Précisons que les termes quadratiques de l'hamiltonien de Luttinger ont la même symétrie que les termes du hamiltonien de contrainte. En conséquence, l'anisotropie de forme des boîtes peut conduire à une description similaire à celle de l'expression (3.33) des états de valence. Mentionnons à cet égard que T. Belladj et coll. [61] ont mesuré un coefficient de mélange  $|\beta|$ , induit par l'anisotropie de forme, voisin de 0.2 sur des boîtes de GaAs épitaxiées par gouttelettes (boîtes non soumises à des contraintes).

### 3.3.2 Hamiltonien

Le terme hyperfin de contact est nul pour les états de valence. L'interaction hyperfine trou-noyaux provient du terme dipolaire et orbital [cf. expression (3.30)]. Cette interaction

est notable uniquement avec la partie de la fonction d'onde contenue dans un volume de la taille d'une cellule unité, autour du noyau considéré [62, 63].

Les hamiltoniens de couplage hyperfin pour les états de trous lourds et légers peuvent, respectivement, s'écrire [63] :

$$H^{hh} = \sum_j C_j^h S_z^h I_z^j \quad (3.34)$$

$$H^{lh} = \sum_j \frac{C_j^h}{3} [-2(S_x^h I_x^j + S_y^h I_y^j) + S_z^h I_z^j] \quad (3.35)$$

avec  $C_j^h = C_\varepsilon^h |\Phi(\vec{r}_j)|^2 \nu_0$ , où  $C_\varepsilon^h$  est la constante hyperfine du trou avec un noyau d'espèce  $\varepsilon$  et  $\vec{S}^h$  désigne l'opérateur de pseudo-spin  $\frac{1}{2}$  du trou. Cette constante est estimée théoriquement dans la référence [63] à :  $C_{In}^h = 4.0 \mu\text{eV}$ ,  $C_{As}^h = 4.4 \mu\text{eV}$  et  $C_{Ga}^h = 3.0 \mu\text{eV}$ . Cette estimation est en accord avec les résultats théoriques de J. Fischer et coll. [64], où ils évaluent  $C_{Ga}^h$  et  $C_{As}^h$  à hauteur<sup>13</sup> de  $4 \mu\text{eV}$ . Finalement, la constante de couplage hyperfin du trou est environ dix fois plus faible que celle de l'électron .

### Remarque

Les travaux expérimentaux récents des références [65, 66, 60] conduisent bien à une constante hyperfine du trou environ dix fois plus faible que celle de l'électron. L'utilisation de champs radiofréquences, dans les expériences de la référence [65], permet aux auteurs de mesurer la constante hyperfine du trou pour les différentes espèces nucléaires présentes dans les boîtes quantiques. Les résultats sont surprenants : pour les boîtes de GaAs et d'InAs, les constantes hyperfines du cation et de l'anion sont de signes opposés ; la constante hyperfine du cation est négative.

Une explication possible repose sur la symétrie de la fonction de Bloch des états de valence sur le cation. En effet, pour une fonction de Bloch de symétrie p, les constantes hyperfines du trou pour l'anion et le cation sont toutes deux positives. Cependant, dans la publication [67], les auteurs mettent en évidence une contribution de symétrie d à hauteur de 50 % pour la fonction de Bloch du trou sur le cation, dans les composés binaires d'AlAs et de GaAs. En supposant que la contribution de symétrie d conduise à une constante hyperfine négative et d'intensité plus grande que la contribution de symétrie p, on pourrait éventuellement expliquer les résultats expérimentaux de la référence [65].

### Hamiltonien hyperfin pour des états de valence mélangés

En ne considérant que les termes linéaires en  $\beta$  et en supposant que les fonctions enveloppes des trous lourd et léger sont les mêmes, le hamiltonien hyperfin pour les états de trous mélangés s'exprime de la manière suivante :

<sup>13</sup>. Dans la référence [64], les constantes hyperfines sont évaluées à  $8 \mu\text{eV}$ , pour une cellule unité contenant un seul atome. Avec le choix correct d'une cellule unité contenant deux atomes, on obtient des constantes hyperfines deux fois plus petite.

$$\begin{aligned}
 \tilde{H}^h &= \sum_j C_j^h \left[ \frac{2|\beta|}{\sqrt{3}} (S_x^h I_x^j + S_y^h I_y^j) + S_z^h I_z^j \right] \\
 &= \sum_j C_j^h \left[ \frac{|\beta|}{\sqrt{3}} (S_+^h I_-^j + S_-^h I_+^j) + S_z^h I_z^j \right]
 \end{aligned} \tag{3.36}$$

### Propriétés

Finalement, la structure du hamiltonien (3.36) rappelle celle de l'interaction hyperfine de contact de l'électron de conduction, avec cependant quelques différences :

- L'hamiltonien est anisotrope, avec une constante d'anisotropie valant  $\frac{2|\beta|}{\sqrt{3}}$ .
- $\tilde{H}^h$  ne conserve pas le spin total du système  $\vec{F} = \vec{S}^h + \sum_j \vec{I}^j$  ( $[\tilde{H}^h, \vec{F}] \neq 0$ ). Seule la projection du moment cinétique de spin suivant  $z$  commute avec l'hamiltonien ( $[\tilde{H}^h, F_z] = 0$ ).

Le caractère mélangé du trou est un paramètre important. En effet, l'expression (3.36) nous indique que l'amplitude des termes transverses du couplage hyperfin est définie par le coefficient  $|\beta|$ . De manière similaire à l'électron de conduction, les composantes transverses du couplage hyperfin peuvent induire la relaxation de spin d'un trou polarisé. Néanmoins, la faiblesse du couplage ( $|C^h| \simeq \frac{A^c}{10}$ ) devrait, en théorie, protéger plus longtemps l'information de spin portée par un trou. Ce dernier point est l'objet du prochain chapitre.

# Chapitre 4

## Orientation optique du spin du trou résident

### Sommaire

---

4.1	Polarisation sous excitation résonnante . . . . .	<b>68</b>
4.1.1	Expérience de dichroïsme circulaire photo-induit résolue en temps	68
4.1.2	Mécanisme de polarisation . . . . .	70
4.1.3	Relaxation de spin du trou par interaction hyperfine . . . . .	70
4.1.4	Modélisation de l'expérience de DCP . . . . .	73
4.1.5	Comparaison avec l'expérience . . . . .	79
4.2	Polarisation sous excitation non résonnante . . . . .	<b>82</b>
4.2.1	Expérience avec deux lasers synchronisés . . . . .	82
4.2.2	Modélisation . . . . .	88
4.2.3	Conclusion . . . . .	91

---

Nous présentons, ici, une étude sur les mécanismes de polarisation et de relaxation de spin des trous issus du dopage. Cette étude s'appuie sur une expérience de dichroïsme circulaire photo-induit (DCP) qui permet d'obtenir des informations sur la polarisation de spin des états excités et des états fondamentaux. La polarisation de spin de l'échantillon est étudiée sous excitation résonnante et non résonnante. En raison, de mécanismes de polarisation différents en fonction de la configuration d'excitation choisie, nous montrons que la polarisation de spin du trou résident peut être orientée indépendamment de celle de l'état excité de trion. D'autre part, nous mettons en évidence que l'interaction hyperfine entre les noyaux et le spin du trou est le mécanisme dominant la relaxation de la polarisation de ce dernier.

## 4.1 Polarisation sous excitation résonnante

Nous commençons par présenter les résultats d'une expérience de DCP, sous excitation résonnante, sur un échantillon de boîtes quantiques dopées p. Cette expérience permet de mettre en évidence l'orientation optique de l'état fondamental de trou. Nous discutons ensuite le mécanisme de polarisation ainsi que la dynamique de relaxation de spin du trou induite par l'interaction hyperfine. Nous appuyons nos observations expérimentales par une modélisation de la dynamique de spin dans notre échantillon.

### 4.1.1 Expérience de dichroïsme circulaire photo-induit résolue en temps

La figure 4.1 (a) présente les résultats d'une expérience pompe-sonde en configuration de DCP effectuée sur un échantillon de boîtes quantiques dopées p à  $2.10^{11} \text{ cm}^{-2}$  (74K31). La sonde définit l'énergie de la transition fondamentale des boîtes étudiées. L'énergie de l'impulsion sonde est choisie au maximum de l'intensité de luminescence de l'échantillon à 1.35 eV, de manière à maximiser le signal. L'impulsion pompe est résonnante en énergie avec l'impulsion sonde. L'expérience est effectuée dans un cryostat à bain d'hélium, la température de l'échantillon est de 2 K. Les transitions mises en jeu sont rappelées sur la figure 4.1 (b). Il n'y a pas de champ magnétique appliqué. Cette expérience est réalisée avec un modulateur élasto-optique qui alterne la polarisation du faisceau pompe entre circulaire gauche et circulaire droite<sup>1</sup>, à une fréquence  $f_m = 42 \text{ kHz}$ . On limite ainsi les effets de polarisation dynamique nucléaire.

Avant d'interpréter nos résultats expérimentaux, rappelons l'information contenue dans le signal de DCP. Le signal mesuré possède deux contributions (cf. chapitre 2) :

$$\begin{aligned} DCP(\Delta t) &\propto \Delta\rho_h - \Delta\rho_T \\ \Delta\rho_h &= \rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow} \\ \Delta\rho_T &= \rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow} \end{aligned}$$

---

1. Le signal mesuré correspond à la différence entre les signaux provenant des excitations circulaire + et circulaire -.

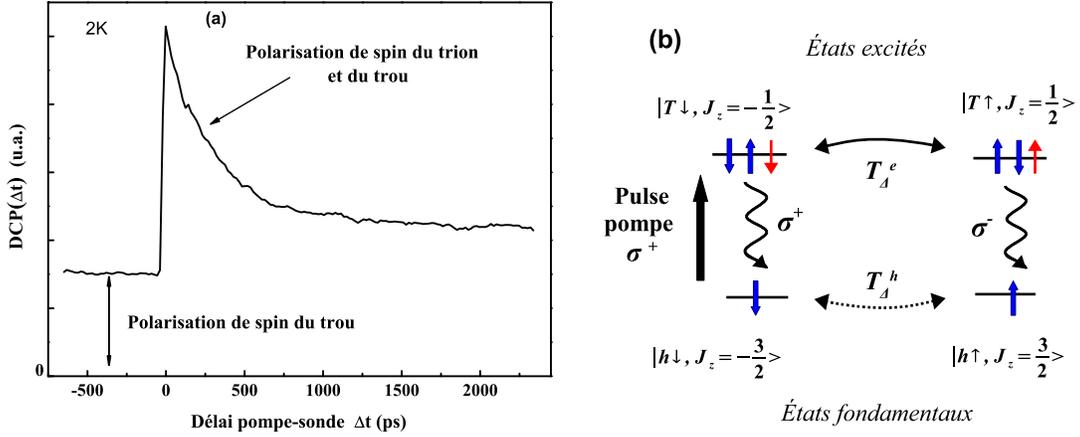


FIGURE 4.1: (a) Signal de DCP résolu en temps sur l'échantillon de boîtes quantiques dopées  $p$  à  $2.10^{11} \text{ cm}^{-2}$  [68, 60]. La figure (b) schématise les transitions optiques mises en jeu ainsi que les processus de retournement de spin de l'électron dans l'état trion (double flèche en trait plein) et du trou (double flèche en trait pointillé). Les flèches bleues représentent le spin du trou, les flèches rouges celui de l'électron. Les états de spin du trion sont désignés par  $|T \uparrow\rangle$  et  $|T \downarrow\rangle$ , ceux du trou résident par  $|h \uparrow\rangle$  et  $|h \downarrow\rangle$ .

où  $\Delta\rho_h$  et  $\Delta\rho_T$  sont respectivement les différences de population des états de trous et de trions. Avec  $S_z^e \propto \Delta\rho_T$  et  $S_z^h \propto \Delta\rho_h$ , le signal de DCP est sensible aux polarisations de spin suivant  $z$  des états excités  $S_z^e$  et fondamentaux  $S_z^h$ .

On remarque sur la courbe de la figure 4.1 (a) deux dynamiques :

- Sur les premières centaines de picosecondes, on constate une décroissance rapide du signal. Il s'agit de la contribution des trions  $X^+$  photocréés<sup>2</sup>. La décroissance témoigne de la recombinaison radiative ( $T_r$ ) et de la relaxation de spin de l'électron ( $T_\Delta^e$ ) dans l'état trion.
- La dynamique lente se manifeste sur la fenêtre temporelle complète : le signal est présent jusqu'aux délais négatifs ( $\Delta t \leq 0$ ). Ce délai correspond au maximum d'excursion entre la pompe et la sonde, c'est-à-dire 13 ns (période de répétition du laser). Ce signal, présent au-delà du temps de recombinaison radiative des trions ( $T_r \simeq 800$  ps), peut donc être associé, sans ambiguïté, à la polarisation de spin des trous résidents.

La capacité de polariser le trou est fondamentale ; c'est le point de départ de plusieurs études qui sont menées dans cette thèse. Nous présentons le mécanisme de polarisation sous excitation résonnante dans le paragraphe suivant.

2. La contribution des boîtes non dopées est marginale. En effet, en configuration de DCP et en présence de faibles champs magnétiques, seul le signal de cohérence des états excitoniques, de symétrie  $X$  et  $Y$ , est mesuré. Comme il a été montré dans les références [46, 45], la cohérence sur les boîtes d'ensemble s'amortit très vite : en moins de 100 ps le signal qui lui est associé devient négligeable.

### 4.1.2 Mécanisme de polarisation

1. Initialement les populations de spin du trou sont à l'équilibre thermodynamique :  $\rho_{h\uparrow} = \rho_{h\downarrow} = \frac{1}{2}$ . La polarisation de spin du trou est nulle.
2. L'impulsion pompe, par exemple polarisée  $\sigma^+$ , vide (pour une impulsion  $\pi$ ) la population de trou  $\rho_{h\downarrow}$  et peuple la population de trion  $\rho_{T\downarrow}$ . A cet instant, les polarisations de spin dans l'état fondamental et excité sont créées.
3. L'électron dans l'état  $|T\downarrow\rangle$  "spin flip" par interaction hyperfine et l'état du trion  $|T\uparrow\rangle$  devient ainsi occupé. En effet, nous avons vu, dans le précédent chapitre, que le temps caractéristique  $T_{\Delta}^e$  du couplage hyperfin pour l'électron de conduction est voisin de 500 ps. Le temps de vie  $T_r$  du trion de 800 ps est suffisamment long pour permettre un couplage efficace entre les états  $|T\downarrow\rangle$  et  $|T\uparrow\rangle$ .
4. Après recombinaison radiative, la polarisation de spin du trou demeure, il y a eu un transfert de population entre les états  $|h\downarrow\rangle$  et  $|h\uparrow\rangle$ .
5. Cette polarisation de spin du trou, ainsi créée, relaxe en partie pendant l'intervalle de temps  $T_L$  séparant deux impulsions pompe. En effet, la présence d'un signal non nul au temps négatif signifie que le trou n'a pas perdu entièrement sa polarisation de spin lorsque l'impulsion suivante arrive.

Ainsi, lorsque l'impulsion pompe suivante excite le système, le mécanisme de polarisation se répète mais les conditions initiales des populations de spin du trou sont différentes. La polarisation de spin du trou va donc successivement augmenter suite à chaque impulsion pompe jusqu'à atteindre un régime stationnaire. Une fois ce régime atteint, l'effet de chaque pulse sur le système est identique. Nous présentons une étude du nombre d'impulsions nécessaires pour atteindre le régime stationnaire dans le chapitre suivant.

En résumé, sous excitation résonnante, le "spin flip" de l'électron dans l'état trion dû à l'interaction hyperfine permet de polariser le spin du trou résident des boîtes quantiques. Ajoutons que B. Gerardot et coll. ont obtenu des résultats similaires sur des boîtes uniques de InAs [12].

Cependant, si la relaxation de spin du trou semble plus longue que celle de l'électron, elle est néanmoins manifeste : pour les délais pompe-sonde compris entre 2 et 13 ns, le signal et donc la polarisation de spin du trou diminue de moitié [cf. figure 4.1 (a)]. En supposant un comportement exponentiel de la relaxation de spin, cela correspond à un temps de relaxation d'environ 10 ns. Il nous faut maintenant déterminer le mécanisme responsable de la relaxation du trou sur cette échelle de temps.

### 4.1.3 Relaxation de spin du trou par interaction hyperfine

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre précédent, plusieurs expériences ont mis en évidence le caractère mélangé des états de valence [69, 58, 59]. Le mélange, entre les états

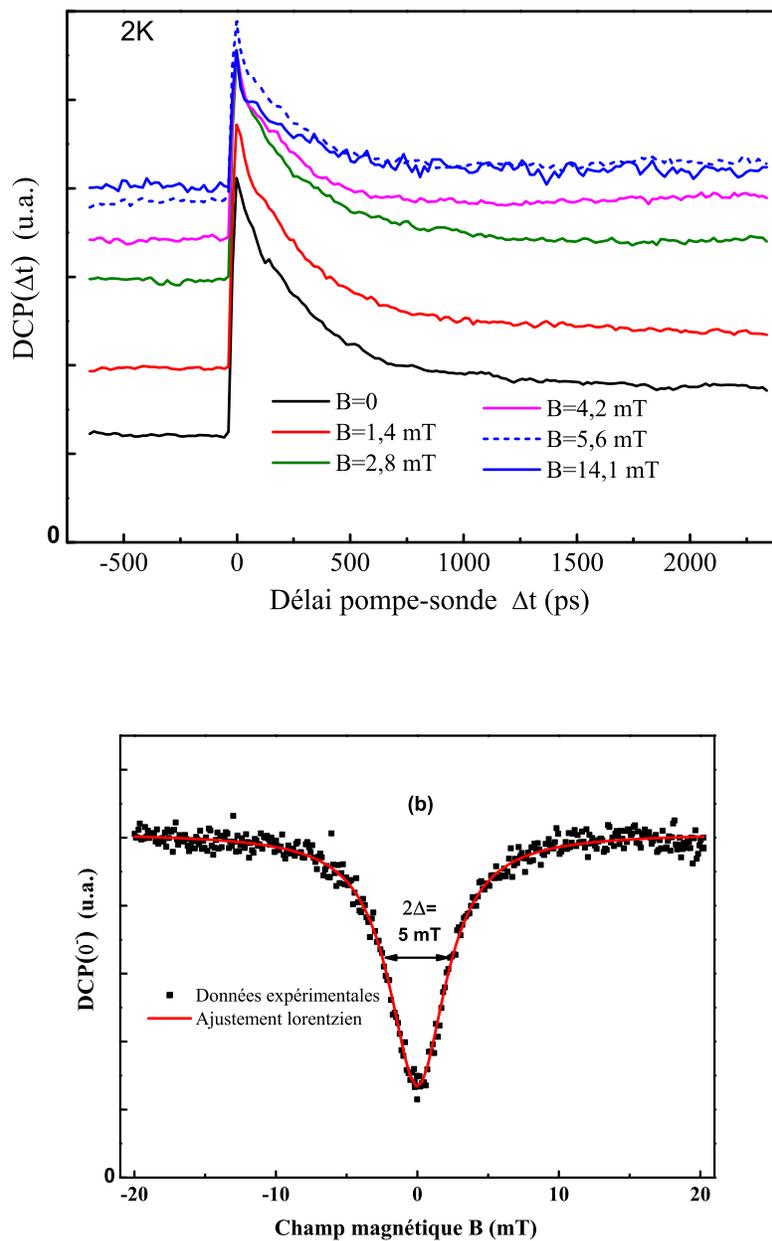


FIGURE 4.2: (a) Signaux de DCP résolus en temps, pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué. (b) Signal de DCP obtenu, à un délai pompe-sonde fixe de  $\Delta t \simeq 13$  ns ( $\Delta t < 0$ ), en fonction du champ magnétique appliqué. A ce délai pompe-sonde, seule la polarisation de spin du trou contribue au signal. La largeur à mi-hauteur de la courbe expérimentale en fonction du champ est d'environ 5 mT.

de trous lourds et légers, induit une composante transverse dans le couplage hyperfin entre le spin du trou et les spins nucléaires. En fonction du degré de mélange, cette composante induit une relaxation plus ou moins rapide de la polarisation de spin du trou.

De manière similaire à l'électron, l'étude de la polarisation de spin du trou, en fonction du champ magnétique longitudinal, permet de mettre en évidence la manifestation de l'interaction hyperfine trou-noyaux.

La figure 4.2 (a) montre l'évolution du signal de DCP résolu en temps en fonction du champ magnétique appliqué en configuration Faraday. Dans cette configuration, le champ magnétique est appliqué parallèlement à la direction d'initialisation du spin  $\vec{e}_z$ , qui est également l'axe de croissance des boîtes.

Les constats expérimentaux sont les suivants :

- Le signal augmente globalement avec l'amplitude du champ dans une gamme de 0 à 10 mT, puis il sature au-delà.
- Lorsque le champ augmente, l'amplitude du signal pour un délai voisin de 2 ns se rapproche de celle pour un délai de 13 ns ; le signal de polarisation de spin du trou ( $\Delta t \gtrsim 2$  ns) diminue donc de moins en moins entre deux impulsions.

Ces observations expérimentales nous indiquent que la relaxation de spin du trou est significativement affectée par un faible champ magnétique.

La courbe de la figure 4.2 (b) permet d'estimer plus finement le champ caractéristique nécessaire pour inhiber la relaxation de spin de trou. Cette expérience est réalisée en fonction du champ appliqué en configuration Faraday, à un délai temporel pompe-sonde fixe d'environ 13 ns. Rappelons qu'à ce délai, seule la polarisation de spin du trou est présente.

Conformément aux courbes résolues en temps (cf. figure 4.2), le signal de polarisation de spin du trou, à un délai pompe-sonde d'environ 13 ns, augmente puis sature. On observe sur la figure 4.2 (b) que la polarisation en fonction du champ suit un comportement lorentzien, avec une largeur caractéristique à mi-hauteur d'environ 5 mT.

## Interprétation

L'application d'un champ très faible permet donc de restaurer la polarisation de spin du trou. Cela suggère un mécanisme de relaxation qui est, d'une part, très sensible au champ magnétique, et d'autre part, associé à un temps de relaxation d'une dizaine de nanosecondes. Parmi les candidats possibles, on trouve l'interaction hyperfine et les mécanismes basés sur l'interaction trou-phonon assistée par le couplage spin-orbite [70, 71, 72, 73]. Ces derniers présentent des caractéristiques incompatibles avec nos observations :

- L'efficacité des processus de relaxation n'est pas affectée par des champs de l'ordre de la dizaine de milliteslas.
- Dans cette gamme de champ et à une température de 2 K, ces mécanismes conduisent à des temps de relaxation de l'ordre de la milliseconde [70, 71, 72, 73].

Seul un mécanisme de relaxation de spin lié à l'interaction hyperfine paraît cohérent avec nos constats expérimentaux. On peut interpréter simplement le comportement de la polarisation de spin du trou en fonction du champ magnétique : le couplage hyperfin se traduit par un champ magnétique effectif sur le spin du trou dont les fluctuations entraînent une relaxation de la polarisation. L'application d'un champ magnétique écrante le champ effectif, le spin du trou se trouve protégé du couplage et la polarisation de celui-ci augmente. Précisons que l'interaction hyperfine présente la particularité suivante : lorsque le mécanisme de relaxation est écranté par un champ magnétique, le temps caractéristique  $T_{\Delta}$  associé à la relaxation n'augmente pas avec l'amplitude du champ, mais c'est l'amplitude de relaxation de la polarisation de spin qui, en revanche, diminue.

De plus, le champ caractéristique nécessaire pour écranter le couplage hyperfin du trou ( $\sim 5$  mT) est d'un ordre de grandeur inférieur à celui de l'électron ( $\sim 50$  mT). Cette observation est cohérente au regard des constantes de couplage hyperfin de l'électron  $A^e$  et du trou  $C^h$  :  $|\frac{C^h}{A^e}| \simeq 0.1$ . Cependant, cette observation est à approfondir. En effet, les fluctuations des composantes transverses, du champ hyperfin effectif sur le spin du trou, dépendent également du coefficient de mélange  $\beta$  entre les états lourds et légers et du facteur de Landé. Afin d'appuyer notre interprétation, nous présentons une modélisation de l'expérience de DCP, qui tient compte de l'interaction hyperfine de l'électron dans l'état trion et du trou résident.

#### 4.1.4 Modélisation de l'expérience de DCP

Le couplage hyperfin est décrit dans l'approche de I. A Merkulov et coll. [3, 63, 68]. Les considérations concernant les électrons, décrites au chapitre 3, s'appliquent également aux trous résidents. Le spin des électrons dans l'état trion et des trous résidents précessent autour du champ hyperfin statique, qui est distribué aléatoirement de boîte en boîte. Avant d'aborder la dynamique de la polarisation de spin dans notre système, nous établissons les relations nécessaires à la modélisation du couplage hyperfin trou-noyaux.

### Caractéristiques du couplage hyperfin sur le trou

#### Champ effectif sur le trou

De manière analogue à l'électron, le champ hyperfin effectif sur le trou s'exprime de la manière suivante<sup>3</sup> :

$$H^h = -g_h \mu_B \vec{S}^h \cdot \vec{B}_n^h \quad (4.1)$$

$$\text{avec } \vec{B}_n^h = \frac{-1}{g_h \mu_B} \sum_j C_j^h [\alpha (I_x^j \vec{e}_x + I_y^j \vec{e}_y) + I_z^j \vec{e}_z]$$

3. Pour l'hamiltonien d'interaction avec un champ magnétique, nous adoptons la convention suivante :  $H = g_e \mu_B \vec{S}^e \cdot \vec{B}$  pour un électron et  $H = -g_h \mu_B \vec{S}^h \cdot \vec{B}$  pour un trou, avec  $\mu_B$  positif.

avec  $C_j^h = C_\varepsilon^h |\Phi_h(\vec{r}_j)|^2 \nu_0$ ,  $\alpha = \frac{2|\beta|}{\sqrt{3}}$  le paramètre d'anisotropie, et  $\beta$  le coefficient de mélange entre les états lourds et légers.

### Distribution

L'amplitude et la direction du champ hyperfin sont distribuées de boîte en boîte de manière gaussienne :

$$P(\vec{B}_n^h) = \frac{1}{\pi^{\frac{3}{2}} \alpha^2 \Delta_h^3} \exp\left[-\frac{(B_{n,x}^h)^2}{\alpha^2 \Delta_h^2} - \frac{(B_{n,y}^h)^2}{\alpha^2 \Delta_h^2} - \frac{(B_{n,z}^h)^2}{\Delta_h^2}\right] \quad (4.2)$$

où  $\Delta_h$  et  $\alpha\Delta_h$  sont, respectivement, les moyennes quadratiques de  $\vec{B}_n^h$  selon  $z$  et  $(x, y)$ . En relation avec la distribution  $P(\vec{B}_n^h)$ , la moyenne quadratique  $\Delta_h$  est définie de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Delta_h^2 &= 2[\langle (B_{n,z}^h)^2 \rangle - \langle B_{n,z}^h \rangle^2] \\ &= \left(\frac{1}{g_h \mu_B}\right)^2 \frac{8}{3N} \sum_\varepsilon x_\varepsilon (C_\varepsilon^h)^2 I^\varepsilon (I^\varepsilon + 1) \end{aligned} \quad (4.3)$$

où  $x_\varepsilon$  est la composition chimique des boîtes telle que  $\sum_\varepsilon x_\varepsilon = 1$ . On définit également les temps caractéristiques du couplage transverse  $T_\Delta^h$  et longitudinal  $T_{\Delta\parallel}^h$  :

$$T_{\Delta\parallel}^h = \frac{\hbar}{|g_h \mu_B| \Delta_h} \quad T_\Delta^h = \frac{\hbar}{|g_h \mu_B| \alpha \Delta_h} \quad (4.4)$$

Hormis le caractère anisotrope du champ hyperfin effectif sur le trou, ces relations sont similaires à celles définies sur l'électron (cf. chapitre 3).

### Relations entre les champs nucléaires effectifs

Nous avons établi, au chapitre 3, que le champ hyperfin  $\vec{B}_n^e$  effectif sur l'électron s'écrit :

$$\vec{B}_n^e = \frac{1}{g_e \mu_B} \sum_j A_j^e \vec{I}^j \quad \text{avec} \quad A_j^e = A_\varepsilon^e |\Phi_\varepsilon(\vec{r}_j)|^2 \nu_0 \quad (4.5)$$

Avec les deux hypothèses suivantes :

- les fonctions enveloppes sont identiques pour l'électron et le trou,  $|\Phi_\varepsilon(\vec{r}_j)|^2 = |\Phi_h(\vec{r}_j)|^2$ ,
- la valeur de la constante hyperfine est considérée indépendante de l'espèce nucléaire  $\varepsilon$ , soit  $A_\varepsilon^e = A^e$  et  $C_\varepsilon^h = C^h$ ,

on obtient une relation linéaire entre chaque composante des champs hyperfins effectifs  $\vec{B}_n^e$  et  $\vec{B}_n^h$  :

$$\begin{bmatrix} B_{n,x}^e \\ B_{n,y}^e \\ B_{n,z}^e \end{bmatrix} = D \begin{bmatrix} \alpha^{-1} B_{n,x}^h \\ \alpha^{-1} B_{n,y}^h \\ B_{n,z}^h \end{bmatrix} \quad \text{où} \quad D = -\frac{g_h A^e}{g_e C^h} \quad \text{et} \quad \alpha \neq 0 \quad (4.6)$$

On aboutit, également, à une relation similaire entre les moyennes quadratiques :

$$\frac{\Delta_e}{\Delta_h} = |D| \quad (4.7)$$



court que tout autre temps caractéristiques du système. On néglige donc tous les autres processus pendant la durée d'interaction entre la boîte et l'impulsion. L'impulsion, résonnante, polarisée  $\sigma^+$ , couple les états  $|h \downarrow\rangle$  et  $|T \downarrow\rangle$ . La transformation du système, juste après absorption d'une impulsion  $\sigma^+$  résonnante d'aire  $\theta$ , est donnée par l'opérateur unitaire  $T_{\sigma^+}^h$  :

$$T_{\sigma^+}(\theta) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\frac{\theta}{2}) & 0 & -i \sin(\frac{\theta}{2}) \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & -i \sin(\frac{\theta}{2}) & 0 & \cos(\frac{\theta}{2}) \end{bmatrix} \quad (4.10)$$

Après le passage de l'impulsion, le système est donc dans l'état :

$$\rho(0^+) = T_{\sigma^+}(\theta)\rho(0^-)T_{\sigma^+}^\dagger(\theta) \quad (4.11)$$

La période de répétition des impulsions est  $T_L \simeq 13$  ns. A l'instant  $t = 0^-$  précédant le passage de l'impulsion, seuls les états de trou sont occupés :

$$\rho(0^-) = \begin{bmatrix} \rho_{h\uparrow}(0^-) & \rho_{h+}^*(0^-) & 0 & 0 \\ \rho_{h+}(0^-) & \rho_{h\downarrow}(0^-) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad \begin{aligned} \rho_{h\uparrow}(0^-) + \rho_{h\downarrow}(0^-) &= 1 \\ \Updownarrow \\ \rho_{h\uparrow(\downarrow)}(0^-) &= \frac{1}{2} + (-)S_z^h(0^-) \end{aligned} \quad (4.12)$$

Notons, qu'en raison des relations (4.9) et (4.12), on comprend que les termes de cohérence "optique" entre les états du trou et du trion n'interviennent pas dans le calcul des polarisations de spin.

Finalement, avec les expressions (4.11) et (4.12) on obtient :

$$\rho(0^+) = \begin{bmatrix} \rho_{h\uparrow}(0^-) & \rho_{h+}^*(0^-) \cos(\frac{\theta}{2}) & & \\ \rho_{h+}(0^-) \cos(\frac{\theta}{2}) & \rho_{h\downarrow}(0^-) \cos^2(\frac{\theta}{2}) & & \\ & & 0 & 0 \\ & & 0 & \rho_{h\downarrow}(0^-) \sin^2(\frac{\theta}{2}) \end{bmatrix} \quad (4.13)$$

A l'aide de la relation (4.9), on déduit des expressions (4.13) et (4.12), les composantes des polarisations de spin photocréée et résidente à l'instant  $t = 0^+$  :

$$\begin{cases} \vec{S}^e(0^+) = (0, 0, -A[\frac{1}{2} - S_z^h(0^-)]) \\ \vec{S}^h(0^+) = (CS_x^h(0^-), CS_y^h(0^-), \frac{1}{2}(BS_z^h(0^-) + A)) \end{cases} \quad (4.14)$$

où  $A = \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})$ ,  $B = 1 + \cos^2(\frac{\theta}{2})$  et  $C = \cos(\frac{\theta}{2})$ .

### Dynamique des polarisations de spin du trion et du trou dans le champ total

Dans le point de vue que l'on adopte ici pour décrire l'interaction hyperfine, les polarisations de spin du trou et du trion précessent autour de leur champ hyperfin effectif. En considérant également le champ  $\vec{B} = B\vec{e}_z$  appliqué en configuration Faraday, les polarisations de spin résidente et photocréée précessent donc, respectivement, autour des champs

totaux  $\vec{B} + \vec{B}_n^h$  et  $\vec{B} + \vec{B}_n^e$ . Les composantes des champs  $\vec{B}_n^h$  et  $\vec{B}_n^e$  sont colinéaires dans la direction  $z$  et dans le plan  $(x,y)$  [cf. équation (4.6)]. La symétrie du problème dans le plan  $(x,y)$  permet de réduire une dimension et de considérer les champs nucléaires  $\vec{B}_n^h$  et  $\vec{B}_n^e$  distribués uniquement dans le plan  $(x,z)$ .

### 1) Précession du trion

Le trion précesse tout en se recombinant radiativement, sa dynamique de spin est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{d\vec{S}^e(t)}{dt} = \vec{w}_e \times \vec{S}^e(t) - \frac{\vec{S}^e(t)}{T_r} \text{ avec } \vec{w}_e = \frac{g_e \mu_B}{\hbar} (\vec{B}_n^e + \vec{B}) \quad (4.15)$$

où  $T_r$  est le temps de vie radiatif du trion. La solution de cette équation est donnée par :

$$\begin{cases} S_x^e(t) = S_z^e(0^+) \sin(\xi_e) \cos(\xi_e) [1 - \cos w_e t] \exp(-\frac{t}{T_r}) \\ S_y^e(t) = -S_z^e(0^+) \sin(\xi_e) \sin(w_e t) \exp(-\frac{t}{T_r}) \\ S_z^e(t) = S_z^e(0^+) [\cos^2(\xi_e) + \sin^2(\xi_e) \cos w_e t] \exp(-\frac{t}{T_r}) \end{cases} \quad (4.16)$$

avec  $w_e = |\vec{w}_e|$  et  $\xi_e$  l'angle entre le champ total  $\vec{B} + \vec{B}_n^e$  et  $\vec{e}_z$ .

### 2) Contribution de l'émission spontanée

La dynamique de la polarisation du trou est reliée à celle du trion par l'équation :

$$\frac{d\vec{S}^h(t)}{dt} = \vec{w}_h \times \vec{S}^h(t) + \frac{S_z^e(t) \vec{e}_z}{T_r} \text{ avec } \vec{w}_h = -\frac{g_h \mu_B}{\hbar} (\vec{B}_n^h + \vec{B}) \quad (4.17)$$

L'émission spontanée du trion induit une polarisation de spin sur l'état fondamental. On désigne cette contribution spontanée par  $\vec{S}_1^h$ . La contribution élémentaire  $dS_{1z}^h(t')$  pendant l'intervalle  $[t', t' + dt']$  vérifie la relation suivante :

$$d\rho_{h\uparrow(h\downarrow)}(t') = \frac{\rho_{T\uparrow(T\downarrow)}(t')}{T_r} dt' \Rightarrow dS_{1z}^h(t') = \frac{S_z^e(t')}{T_r} dt' \quad (4.18)$$

Cette contribution élémentaire  $dS_{1z}^h(t')$  précesse ensuite autour du champ total  $\vec{B} + \vec{B}_n^h$ . La somme de toutes les contributions pendant l'intervalle de temps  $[0, t]$  conduit aux expressions suivantes :

$$\begin{cases} S_{1x}^h(t) = \int_0^t S_z^e(t') \sin(\xi_h) \cos(\xi_h) [1 - \cos w_h(t - t')] \frac{dt'}{T_r} \\ S_{1y}^h(t) = -\int_0^t S_z^e(t') \sin(\xi_h) \sin[w_h(t - t')] \frac{dt'}{T_r} \\ S_{1z}^h(t) = \int_0^t S_z^e(t') [\cos^2(\xi_h) + \sin^2(\xi_h) \cos w_h(t - t')] \frac{dt'}{T_r} \end{cases} \quad (4.19)$$

où  $w_h = |\vec{w}_h|$  et  $\xi_h$  est l'angle entre le champ total  $\vec{B} + \vec{B}_n^h$  et  $\vec{e}_z$ .

### 3) Contribution "stimulée"

L'absorption d'une impulsion  $\sigma^+$  génère un déséquilibre des populations de trou et donc

une polarisation de spin. On désigne par  $\vec{S}_2^h$  la polarisation de spin du trou stimulée par le couplage avec l'impulsion. A l'instant  $t = 0^+$ , la polarisation de spin du trou stimulée  $\vec{S}_2^h(0^+)$  est donnée par la relation :  $\vec{S}_2^h(0^+) = \vec{S}^h(0^+)$  où  $\vec{S}^h(0^+)$  vérifie l'équation (4.14). La polarisation  $\vec{S}_2^h(0^+)$  précesse ensuite autour du champ total  $\vec{B} + \vec{B}_n^h$  :

$$\frac{d\vec{S}_2^h(t)}{dt} = \vec{w}_h \times \vec{S}_2^h(t) \quad (4.20)$$

L'équation (4.20) conduit à la solution suivante :

$$\vec{S}_2^h(t) = [\vec{S}_2^h(0^+) \cdot \vec{n}] \cdot \vec{n} + [\vec{S}_2^h(0^+) - (\vec{S}_2^h(0^+) \cdot \vec{n}) \cdot \vec{n}] \cos w_h t - [\vec{S}_2^h(0^+) \times \vec{n}] \sin w_h t \quad (4.21)$$

avec  $\vec{n} = \frac{\vec{B} + \vec{B}_n^h}{|\vec{B} + \vec{B}_n^h|}$ .

#### 4) Train d'impulsions, condition de périodicité

La succession des impulsions impose au système de passer par un régime transitoire et d'atteindre ensuite un régime stationnaire (cf. section 4.1.2), où l'effet de chaque impulsion sur le système est identique. Cela se traduit par la condition périodique suivante :

$$\begin{cases} \vec{S}^h(t) = \vec{S}^h(t + T_L) \\ \vec{S}^e(t) = \vec{S}^e(t + T_L) \end{cases}, \text{ avec } \vec{S}^h = \vec{S}_1^h + \vec{S}_2^h \quad (4.22)$$

où  $T_L$  est la période de répétition des impulsions. Afin de résoudre la dynamique de polarisation sur le système, il faut déterminer la polarisation résidente  $\vec{S}^h(0^-)$  avant chaque impulsion. On obtient  $\vec{S}^h(0^-)$ , en appliquant la condition périodique (4.22) à l'instant  $t = 0^-$  :

$$\vec{S}^h(0^-) = \vec{S}^h(T_L) \quad (4.23)$$

où  $\vec{S}_1^h(T_L)$  et  $\vec{S}_2^h(T_L)$  sont exprimées en fonction de  $\vec{S}^h(0^-)$  à l'aide, respectivement, des expressions [(4.19), (4.16), (4.14)] et [(4.21), (4.14)].

#### 5) Distribution des champs hyperfins, polarisation moyenne sur l'ensemble des boîtes

Les champs hyperfins effectifs  $\vec{B}_n^h$  et  $\vec{B}_n^e$  sont distribués en amplitude et en direction sur l'ensemble des boîtes. La polarisation de l'ensemble ( $\vec{S}_{moy}^h, \vec{S}_{moy}^e$ ) s'obtient en exprimant la moyenne sur les configurations nucléaires :

$$\begin{cases} \vec{S}_{moy}^h(t) = \int \vec{S}^h(t) P(\vec{B}_n^h) d\vec{B}_n^h \\ \vec{S}_{moy}^e(t) = \int \vec{S}^e(t) P(\vec{B}_n^h) d\vec{B}_n^h \end{cases} \quad (4.24)$$

où  $P(\vec{B}_n^h)$  est la distribution du champ nucléaire effectif sur le spin du trou, définie par l'expression (4.2). Le champ  $\vec{B}_n^e$  étant exprimé à partir des composantes de  $\vec{B}_n^h$  par l'équation (4.6), l'intégration est effectuée uniquement sur les variables du champ hyperfin effectif sur le trou.

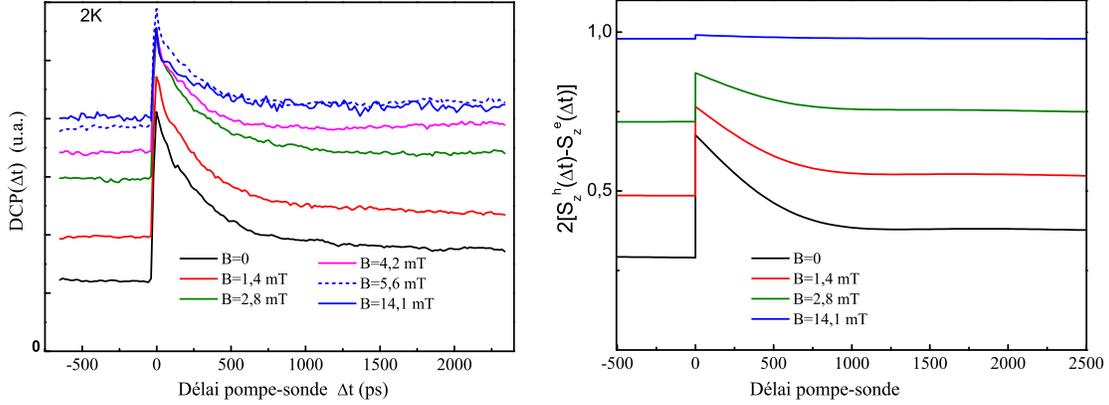


FIGURE 4.3: (a) Signaux de DCP résolus en temps pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué [68]. (b) Simulation du taux de polarisation de spin en fonction du temps,  $2[S_z^h(t) - S_z^e(t)] = [(\rho_{h\uparrow}(t) - \rho_{h\downarrow}(t)) - (\rho_{T\uparrow}(t) - \rho_{T\downarrow}(t))]$ . Les paramètres utilisés sont discutés dans le texte.

Le signal de DCP est finalement donné par l'expression suivante :

$$DCP(\Delta t) \propto S_{z,moy}^h(\Delta t) - S_{z,moy}^e(\Delta t) \quad (4.25)$$

### 4.1.5 Comparaison avec l'expérience

#### Paramètres de la modélisation

L'ensemble des paramètres présents dans la modélisation sont les suivants :  $A^e$ ,  $A^h$ ,  $g_e$ ,  $g_h$ ,  $T_r$ ,  $\Delta_h$ ,  $\alpha$ . Les valeurs utilisées sont discutées ci-dessous.

- Les valeurs des constantes hyperfines sont similaires à celles des références [3, 63, 66] :  $A^e = 55 \mu\text{eV}$ ,  $|C^h| = 4 \mu\text{eV}$ .
- Le facteur de Landé longitudinal de l'électron est estimé à  $|g_e| = 0.46$  dans notre échantillon. Cette mesure a été effectuée, au LPCNO par le groupe de X. Marie et T. Amand, à l'aide d'une expérience de photoluminescence résolue en temps, similaire à celle décrite dans la référence [75]. Nous prenons une liberté de 10 % avec la valeur expérimentale, une valeur de 0.4 rend compte de meilleurs résultats dans la modélisation.
- La valeur ajustée du facteur de Landé longitudinal du trou est  $|g_h| = 1.35$ . Cette valeur est assez proche de celle trouvée par d'autres auteurs dans des boîtes quantiques d'InAs similaires aux nôtres [58].
- Le temps de vie radiatif ( $T_r$ ) des trions ainsi que le temps caractéristique de relaxation ( $T_{\Delta}^e$ ) des électrons par interaction hyperfine ont été mesurés, également par le groupe

de X. Marie et T. Amand, à hauteur de :  $T_r = 800 \text{ ps} \pm 50 \text{ ps}$  et  $T_\Delta^e = 500 \text{ ps} \pm 100 \text{ ps}$ . Les valeurs que nous utilisons dans la modélisation sont :  $T_r = 800 \text{ ps}$  et  $T_\Delta^e = 550 \text{ ps}$ . Les relations  $T_\Delta^e = \frac{\hbar}{|g_e \mu_B| \Delta_e}$  et  $\frac{\Delta_h}{\Delta_e} = \left| \frac{g_e C^h}{g_h A^e} \right|$  [cf. équation (4.7)] conduisent à l'expression suivante :  $\Delta_h = \frac{\hbar}{T_\Delta^e} \left| \frac{C^h}{g_h \mu_B A^e} \right|$ . Cette dernière expression permet d'estimer la moyenne quadratique  $\Delta_h$  grâce, entre autres, à la mesure expérimentale de  $T_\Delta^e$ .

- Sur notre ensemble de boîtes quantiques, plusieurs propriétés sont dispersées, notamment le moment dipolaire électrique. A forte puissance d'excitation, on peut raisonnablement supposer que sur l'ensemble des boîtes l'angle de Rabi moyen est  $\pi/2$ .
- Le dernier paramètre est le facteur d'anisotropie  $\alpha = 2 \frac{\beta}{\sqrt{3}}$  où  $\beta$  est le coefficient de mélange entre les états de trous lourds et trous légers. C'est en réalité le seul paramètre libre, ce qui donne du poids à la modélisation. La valeur extraite des ajustements est  $\alpha = 0.48$ , ce qui conduit à un coefficient de mélange :  $\beta = 0.42$ .

### Mise en évidence d'une relaxation supplémentaire

L'utilisation de ces différents paramètres dans le modèle conduit aux simulations de la figure 4.3 (b). Une première analyse de ces simulations permet de constater que leurs comportements semblent assez proches, aux faibles valeurs de champ ( $B_z = 0$  et  $B_z = 1.4 \text{ mT}$ ), de ceux des courbes expérimentales de la figure 4.3 (a). En revanche, pour des valeurs de champ plus élevées, qui écrantent l'interaction hyperfine ( $B_z = 14.1 \text{ mT}$ ), les simulations ne reproduisent plus les résultats expérimentaux. En effet, l'inhibition de l'interaction hyperfine du trou devrait se manifester par un signal de polarisation de spin trou stationnaire en fonction du temps [cf. figure 4.3 (b)]. Ce n'est pas ce que l'on constate sur la courbe expérimentale obtenue pour un champ  $B_z = 14.1 \text{ mT}$  : entre  $\Delta t = 2 \text{ ns}$  et  $13 \text{ ns}$ , le signal de DCP a diminué de quelques pourcents [cf. figure 4.3 (a)]. Cette diminution de la polarisation de trou, bien que faible sur une échelle de  $13 \text{ ns}$ , traduit une relaxation supplémentaire de la polarisation, induite par un autre mécanisme que le couplage hyperfin. L'effet d'une relaxation additionnelle du trou se manifeste également sur l'amplitude du déclin provenant de la relaxation de spin du trion aux délais pompe-sonde inférieurs à  $500 \text{ ps}$ . On peut le comprendre ainsi :

- Le mécanisme de polarisation (cf. section 4.1.2) sous excitation résonnante conduit à photocréer une polarisation de spin de trion d'autant plus grande que la polarisation de spin du trou est faible :  $S_z^e(0^+) = -\frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2}) [\frac{1}{2} - S_z^h(0^-)]$ , avec  $S_z^e < 0$  et  $S_z^h > 0$ . En conséquence, une relaxation supplémentaire du trou favorise la polarisation de spin du trion et donc l'amplitude du déclin du signal de DCP aux temps courts.
- Lorsque l'interaction hyperfine est écrantée ( $B_z = 14.1 \text{ mT}$ ), sans la présence d'un autre mécanisme de relaxation, la polarisation de spin du trou atteindrait 100% ; la population de trion serait nulle et aucun déclin sur les temps courts ( $< 500 \text{ ps}$ ) ne serait observable

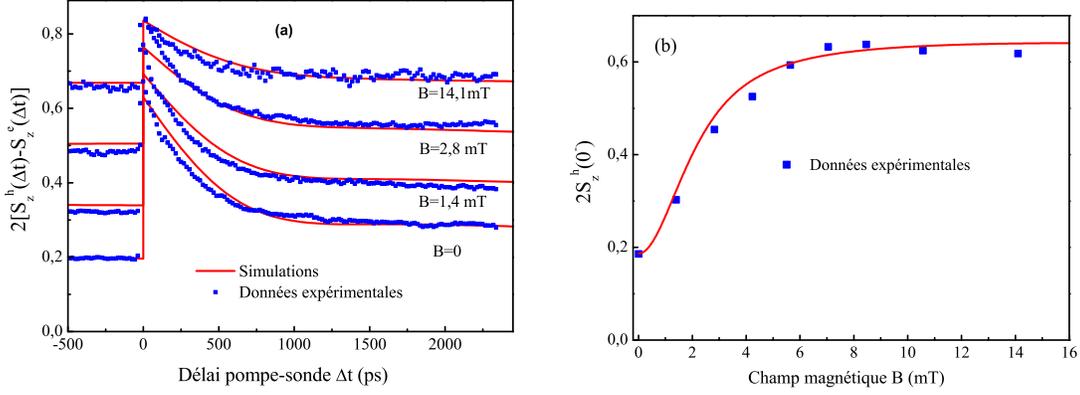


FIGURE 4.4: (a) Les courbes rouges représentent les simulations du taux de polarisation de spin en fonction du temps, pour différentes valeurs de champ magnétique. Les courbes expérimentales de DCP sont représentées en bleu. (b) Simulations et courbes expérimentales aux délais pompe-sonde négatifs, en fonction du champ magnétique. Les simulations (cf. texte) tiennent compte d'un temps de relaxation additionnel  $T_1^h = 0.3 \mu s$ . Les valeurs des paramètres utilisés sont les suivantes :  $A^e = 55 \mu eV$ ,  $|C^h| = 4 \mu eV$ ,  $\beta = 0.42$ ,  $\theta = \pi/2$ ,  $T_r = 790 ps$ ,  $T_\Delta^e = 550 ps$ ,  $|g_e| = 0.46$ ,  $|g_h| = 1.35$ . Ces paramètres conduisent à  $T_\Delta^h \simeq 10 ns$ .

– [cf. 4.3 (b)].

## Bilan

Afin de se confronter plus finement aux résultats expérimentaux, nous introduisons un mécanisme de relaxation additionnel que l'on traduit, dans les équations (4.19) et (4.21) par un amortissement exponentiel, caractérisé par un temps  $T_1^h$ . L'ajustement de la dynamique aux temps courts et de la diminution de la polarisation entre 2 ns et 13 ns conduit à  $T_1^h = 0.3 \mu s$ . La superposition des courbes expérimentales et des simulations sur la figure 4.4 conduit à un très bon accord à la fois pour les courbes temporelles et pour celles réalisées à un délai pompe-sonde fixe de 13 ns. Ces dernières simulations confortent notre interprétation de la dynamique de polarisation de spin du trou dans notre échantillon [68].

En conclusion, le mécanisme dominant la relaxation de la polarisation du trou est l'interaction hyperfine, à travers les termes transverses provenant du mélange entre les états de trous lourds et légers. Elle se caractérise, pour un coefficient de mélange  $\beta$  de 0.42, par un temps de relaxation  $T_\Delta^h \simeq 10 ns$ , et peut être écrantée par un faible champ magnétique de l'ordre de 5 mT.

Les simulations permettent également d'estimer le taux de polarisation du trou qui se situe aux alentours de 20 %, aux délais pompe-sonde négatifs (13 ns), sans champ magnétique appliqué. Cette valeur est essentiellement limitée par le couplage hyperfin trou-noyaux, qui est une source de dépolarisation relativement efficace. En revanche, pour des champs supérieurs à 5 mT, la polarisation est limitée par un mécanisme de relaxation supplémentaire qui conduit à un taux de polarisation de spin du trou voisin de 60 % pour un  $T_1^h = 0.3 \mu s$ .

Concernant le temps  $T_1^h$ , les simulations du signal de DCP ont permis de mettre en évidence sa manifestation sur la polarisation de spin du trou. Néanmoins, la valeur de  $0.3 \mu\text{s}$ , extraite des simulations, est à prendre avec beaucoup de recul. D’une part, parce qu’une estimation d’un temps caractéristique de plusieurs centaines de nanosecondes, à travers l’expression d’une décroissance exponentielle sur une fenêtre temporelle de 13 ns, est très incertaine. D’autre part, l’estimation de  $T_1^h$  est également basée sur la capacité de bien reproduire le comportement du signal aux délais pompe-sonde inférieurs à 500 ps, ce qui peut conduire à sous-estimer la valeur de ce temps. En effet, le signal de cohérence des boîtes non dopées<sup>4</sup>, déclinant en un temps typique de 100 ps [46], est également détecté en configuration de DCP. En conséquence, une contribution de ce signal de cohérence aux délais pompe-sonde assez courts est donc une source d’erreur supplémentaire sur l’ajustement de  $T_1^h$ . Dans le prochain chapitre, nous présentons une nouvelle configuration expérimentale, qui permet de se consacrer plus finement à l’étude de ce temps et des mécanismes qui lui sont associés.

## 4.2 Polarisation sous excitation non résonnante

Dans la partie précédente, nous avons mis en évidence la polarisation de spin du trou résident sous excitation résonnante. Nous nous intéressons ici au cas d’une excitation non résonnante avec la transition fondamentale des boîtes sondées. A cette fin, nous présentons une expérience de DCP à “deux couleurs”.

### 4.2.1 Expérience avec deux lasers synchronisés

#### Principe

Dans la configuration “deux couleurs”, les impulsions pompe et sonde proviennent de deux lasers différents. On peut donc accorder les énergies des faisceaux pompe et sonde de manière indépendante. Les deux lasers sont synchronisés à l’aide d’un dispositif “Lock to clock”. Cet appareil permet d’asservir la période et le décalage temporel des trains d’impulsions provenant des deux lasers. Afin d’ajuster le délai pompe-sonde, et ainsi de réaliser une acquisition résolue en temps, les impulsions pompe passent par une ligne à retard. Le dispositif est décrit en détail dans le chapitre 2 .

#### Renversement de la polarisation résidente

La figure 4.5 (a) présente les résultats d’une expérience de DCP à “deux couleurs”. La polarisation circulaire de la pompe est alternée (MEO). L’énergie de la sonde est fixée à 1.35 eV. L’énergie d’excitation pompe, 1.44 eV, correspond à l’énergie du puits quantique formé par la couche de mouillage. Les constats expérimentaux sont les suivants :

---

4. L’échantillon d’ensemble de boîtes est dopé chimiquement. Bien que la densité de dopant soit supérieure à celle des boîtes, la répartition du nombre de trous par boîte reste statistique. Il demeure donc une certaine quantité de boîtes non dopées dans l’échantillon.

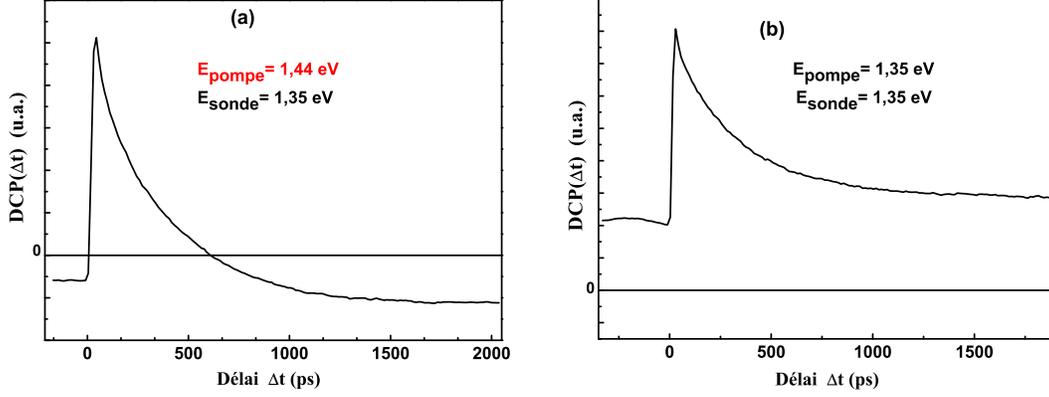


FIGURE 4.5: (a) Expérience de DCP résolue en temps dans une configuration à deux couleurs, hors résonnante. L'énergie d'excitation pompe, non résonnante avec l'énergie de l'impulsion sonde, est de 1.44 eV. (b) Expérience de DCP résolue en temps dans une configuration à deux couleurs résonnante, l'énergie de pompe est accordée avec celle de sonde. Dans les deux expériences l'énergie de l'impulsion sonde est de 1.35 eV. La température de l'échantillon est de 2K.

- On observe un signal non nul au-delà du temps de recombinaison radiative et qui perdure jusqu'au délai négatif ( $\Delta t \simeq 13\text{ns}$ ). On arrive donc également, en excitant à plus haute énergie, à polariser le trou résident des boîtes quantiques.
- La seconde observation que nous faisons concerne le signe du signal de dichroïsme. En effet, au-delà de 600 ps le signal change de signe, et ce jusqu'aux délais négatifs. Avec

$$\begin{aligned}
 DCP(\Delta t) &\propto \Delta\rho_h - \Delta\rho_T \\
 \Delta\rho_h &= \rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow} \\
 \Delta\rho_T &= \rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow}
 \end{aligned}$$

on déduit que la polarisation de spin des trous se trouve alignée dans le même sens que la polarisation de spin photocréée des trions.

Cette dernière conclusion est un peu rapide, car entre 0 et 600 ps les polarisations de spin photocréée et résidente coexistent. Cependant, si on fait l'hypothèse raisonnable que la polarisation de spin des trous ne change pas de signe en fonction du temps :  $\text{sgn}[\Delta\rho_h(13\text{ns})] = \text{sgn}[\Delta\rho_h(0^+)]$ , où  $t = 0^+$  est l'instant juste postérieur à l'impulsion, le constat expérimental :

$$\text{sgn}[\Delta\rho_h(13\text{ns})] = -\text{sgn}[(\Delta\rho_h - \Delta\rho_T)(0^+)] \quad (4.26)$$

implique que  $|\Delta\rho_h| < |\Delta\rho_T|$  et donc  $\text{sgn}[(\Delta\rho_h - \Delta\rho_T)(0^+) = \text{sgn}[-\Delta\rho_T(0^+)]$ . Finalement la relation 4.26 se traduit bien par :

$$\text{sgn}[\Delta\rho_h(13\text{ns})] = \text{sgn}[\Delta\rho_e(0^+)]$$

ce qui justifie la conclusion précédente. Ce constat est singulier car pour une excitation résonnante la polarisation de trou est opposée à celle du trion photocréée (cf. section 4.1).

### Comparaison avec le cas résonnant

Le cas de l'excitation résonnante a été étudié en détail, dans la section précédente, avec une configuration à un laser. Afin d'appuyer la comparaison expérimentale entre les cas résonnant et non résonnant, nous avons réalisé, de nouveau, une étude à résonance mais avec la configuration expérimentale "deux couleurs" : l'énergie du second laser est accordée de manière quasi résonnante<sup>5</sup> avec l'énergie de la sonde à 1,35 eV. Les conditions expérimentales de détection étant identiques entre les cas résonnant et hors résonnant, le signe relatif du signal de DCP entre les deux expériences est un argument physique dont nous pouvons discuter.

Le résultat est présenté sur la figure 4.5 (b). On constate bien que la polarisation de spin du trou est opposée entre le cas résonnant et non résonnant, et qu'elle est de même signe sur les temps courts (<600 ps). Rappelons que dans le cas résonnant, les orientations des polarisations résidentes et photocréées sont imposées par la polarisation d'excitation : le trou et l'électron dans l'état trion ont la même orientation moyenne que dans la paire électron-trou photocréée. On en déduit que, hors résonance :

- La polarisation de spin des électrons dans l'état  $X^+$  est orientée comme celle des électrons photocréés dans la couche de mouillage. Cela confirme que les électrons conservent, au moins en partie, leur polarisation jusqu'à la capture dans les boîtes quantiques.
- La polarisation de spin des trous résidents possède bien, en revanche, une orientation moyenne opposée à celle du trou photocréé dans la couche de mouillage.

Toutes ces observations attestent que le mécanisme de polarisation du trou dans l'état fondamental dépend de la configuration d'excitation. Nous détaillons le mécanisme sous excitation non résonnante dans la partie suivante.

### Mécanisme hors résonance

Dans les puits quantiques, les expériences de photoluminescence résolues en temps montrent que le temps de relaxation de spin de l'électron, à température cryogénique, est de l'ordre d'une centaine de picosecondes, et pour le trou seulement de quelques picosecondes [76]. L'explication repose sur le mélange entre les états de trous lourds et légers, malgré la levée de dégénérescence, qui conduit à un mécanisme de relaxation de spin similaire à celui d'Elliot-Yaffet. Le temps de capture des porteurs, créés initialement dans la couche de mouillage, par les boîtes est mesuré à une dizaine de picosecondes [77]. Ainsi, le spin de l'électron conserve son orientation de spin pendant les processus de relaxation non radiatifs de l'énergie, quand il atteint un niveau discret de la boîte quantique. En revanche, on peut considérer que le trou photocréé est entièrement dépolarisé lorsqu'il atteint le niveau fondamental des boîtes.

---

5. Dans le dispositif "deux couleurs" où pompe et sonde ne proviennent pas du même laser, la précision du recouvrement spectral entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde est celle du spectromètre qui est inférieure à la largeur d'impulsion.

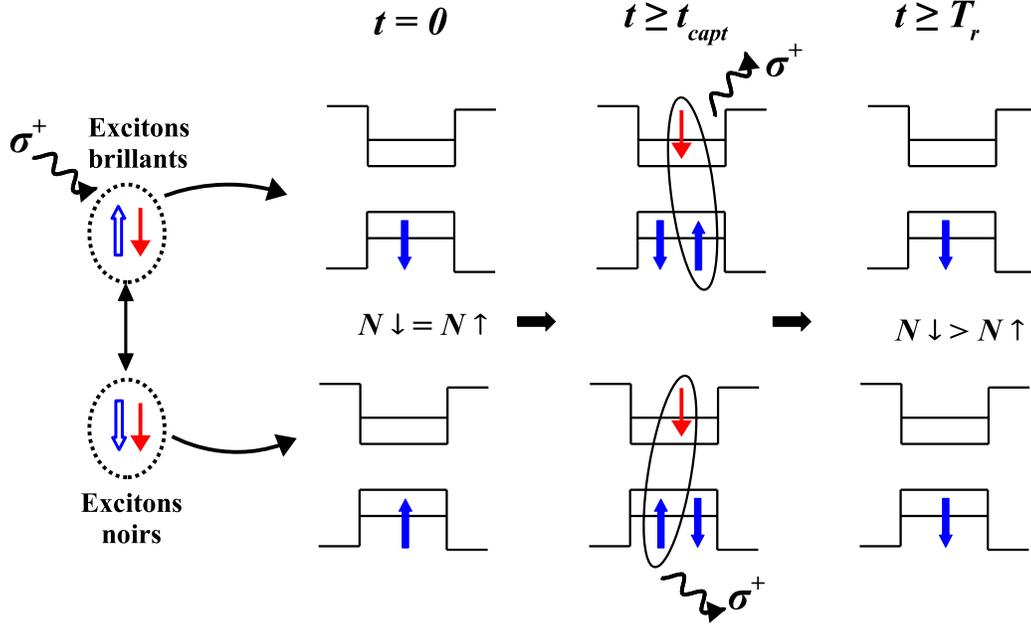


FIGURE 4.6: Schéma du mécanisme de polarisation de spin des trous (flèches bleues);  $t_{capt}$  et  $T_r$  désignent, respectivement, le temps de capture caractéristique des excitons et le temps de vie radiatif des trions. Les flèches rouges représentent le spin des électrons.

### Description

Les deux états d'excitons brillants dans la couche de mouillage (CM) sont désignés par  $|CM \uparrow\downarrow\rangle$  et  $|CM \downarrow\uparrow\rangle$  [les spins de l'électron et du trou sont représentés, respectivement, par  $\uparrow$  ( $\downarrow$ ) et  $\uparrow$  ( $\downarrow$ )]. Les états d'excitons noirs sont désignés par  $|CM \uparrow\uparrow\rangle$  et  $|CM \downarrow\downarrow\rangle$ . On exclut la présence du trion "chaud"  $X^+$  formé d'un électron de conduction et de deux trous occupant des niveaux d'énergie de valence différents.

Avec ces considérations, le mécanisme de polarisation de spin du trou résident, sous pompage non résonnant, se décrit de la manière suivante (cf. figure 4.6) :

1. Initialement, la polarisation de spin du trou est nulle, il y a le même nombre de boîtes dont le trou résident est dans l'état  $|h \uparrow\rangle$  que dans l'état <sup>6</sup>  $|h \downarrow\rangle$ .
2. L'impulsion pompe, par exemple polarisée  $\sigma^+$ , génère des excitons  $|CM \downarrow\uparrow\rangle$  dans la couche de mouillage. Avant d'être capturés par les boîtes, les trous subissent de nombreux processus de retournement de spin et perdent leur polarisation, alors que les électrons la conservent. En conséquence, il se forme également, dans la couche de mouillage, des excitons noirs  $|CM \downarrow\downarrow\rangle$ .

6. Cette description en termes d'états purs pour chaque boîte n'est pas tout à fait rigoureuse. En effet, chaque boîte quantique est initialement dans un mélange statistique des états  $|h \uparrow\rangle$  et  $|h \downarrow\rangle$ , qui se décrit proprement dans le formalisme de la matrice densité. Cependant il nous est plus commode, sans changer la physique du mécanisme, d'adopter une description où les boîtes sont initialement dans des états purs.

3. Les excitons sont ensuite capturés dans les niveaux discrets des boîtes quantiques (les excitons brillants peuvent également se recombiner radiativement avant d'être capturés). En raison du principe de Pauli, la capture est dépendante du spin : les excitons noirs  $|CM \downarrow\downarrow\rangle$  sont capturés par des boîtes dont le spin du trou est dans l'état  $|h \uparrow\rangle$ , les excitons brillants  $|CM \downarrow\uparrow\rangle$  sont capturés par les boîtes dont le spin du trou est dans l'état  $|h \downarrow\rangle$ .
4. Dans chaque boîte ayant capturé un exciton, il se forme dans l'état fondamental un trion  $|T \downarrow\rangle$ . Après recombinaison radiative par émission d'un photon polarisé  $\sigma^+$ , les boîtes ayant capturé un exciton se trouvent dans l'état  $|h \downarrow\rangle$ . Ainsi, le nombre de boîtes dans l'état fondamental  $|h \downarrow\rangle$  ( $N \downarrow$ ) est supérieur au nombre de boîtes dans l'état  $|h \uparrow\rangle$  ( $N \uparrow$ ) : une polarisation de spin des trous apparaît. Précisons que la capture d'un exciton noir permet le passage d'une boîte dans un état  $|h \uparrow\rangle$  à une boîte dans un état  $|h \downarrow\rangle$ . Cette capture est donc responsable de la polarisation de spin des trous résidents. Le mécanisme est schématisé sur la figure 4.6.

En résumé, le processus hors résonnant de polarisation du trou repose sur le fait que l'électron photocréé, dans la couche de mouillage, conserve mieux sa polarisation de spin pendant la thermalisation, que le trou. Contrairement au cas résonnant, l'absorption de l'impulsion ne crée pas instantanément une polarisation sur l'état fondamental (processus de polarisation stimulée). La polarisation résidente est uniquement issue de l'émission spontanée du trion. Le mécanisme conduit à polariser le spin du trou résident selon un sens opposé à celui du trou photocréé dans la couche de mouillage.

### Évolution avec le champ appliqué

La figure 4.7 (a) présente la même expérience de DCP en présence d'un champ magnétique appliqué en configuration Faraday ( $\vec{B} = B\vec{e}_z$ ). On constate également, que le signal de polarisation augmente globalement en fonction de l'amplitude du champ magnétique. Les courbes réalisées à un délai pompe-sonde fixe  $\Delta t \simeq 13$  ns, témoignent de deux régimes d'évolution de la polarisation de spin résidente en fonction du champ appliqué :

- une augmentation rapide dans une largeur caractéristique d'environ 10 mT,
- une évolution plus lente dans une largeur caractéristique estimée à  $\simeq 75$  mT.

Ces observations sont cohérentes avec le mécanisme proposé. En effet, on a établi précédemment que le spin du trou relaxe à travers l'interaction hyperfine. Le champ appliqué écrante, dans un premier temps, le couplage hyperfin du trou. La polarisation de spin résidente augmente donc dans une gamme de champ caractéristique de cette interaction : 0-10 mT. Pour des valeurs de champ magnétique plus importantes, c'est l'interaction hyperfine de l'électron dans l'état trion qui est à son tour écrantée. En conséquence, l'électron dans l'état trion relaxe moins son spin, et la recombinaison radiative favorise d'autant plus le déséquilibre des populations de trou. Contrairement au cas résonnant, la polarisation de trou continue donc d'augmenter dans une gamme de champ : 0-100 mT.

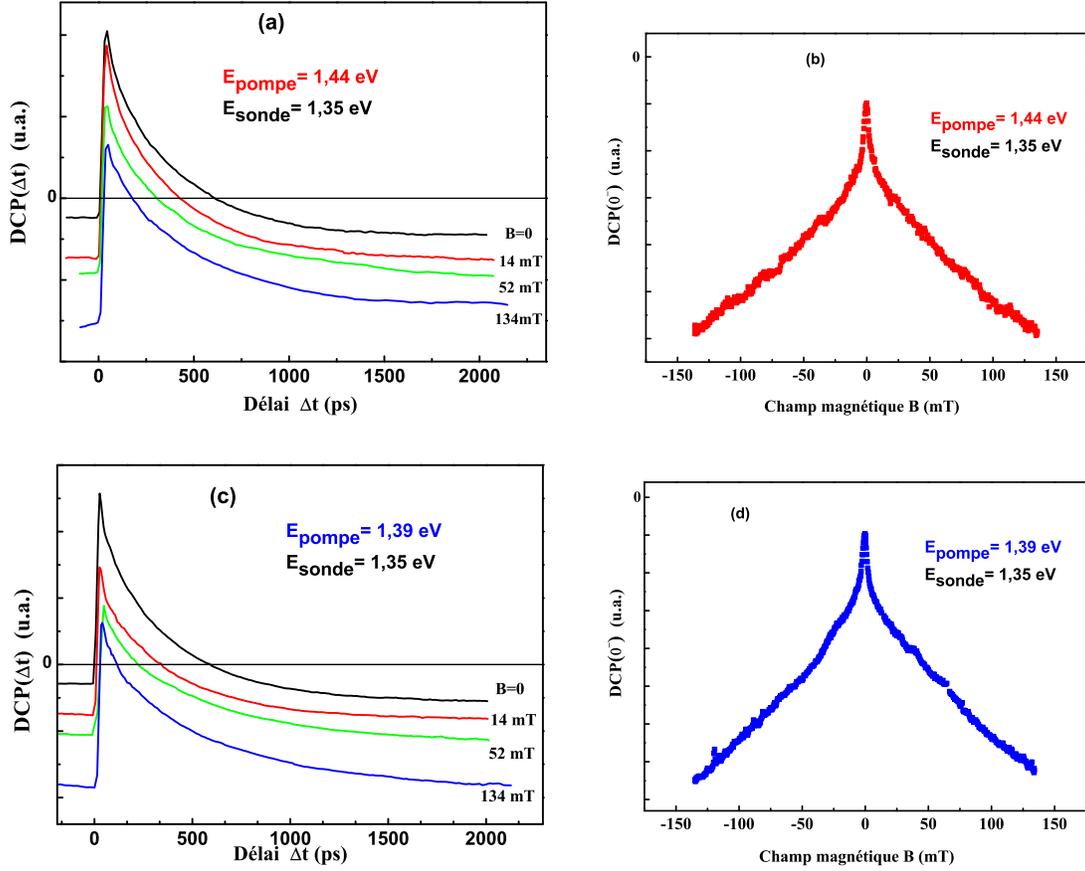


FIGURE 4.7: (a,c) Courbes de DCP résolues en temps pour différentes valeurs du champ magnétique. (b,d) Courbes de DCP, obtenues à un délai pompe-sonde fixe  $\Delta t < 0 \simeq 13$  ns, en fonction du champ magnétique. (a,b) Excitation dans la couche de mouillage, à une énergie de 1,44 eV. (c,d) Excitation dans le continuum des états mixtes, à 1,39 eV. L'énergie de l'impulsion sonde est fixée à 1,35 eV.

L'évolution avec le champ appliqué témoigne donc du rôle différent que joue l'interaction hyperfine de l'électron dans les mécanismes de polarisation résonnant et non résonnant :

- à résonance le couplage hyperfin de l'électron permet la polarisation de spin du trou résident,
- hors résonance, écranter le couplage hyperfin de l'électron favorise la polarisation de spin du trou.

### Excitation dans le continuum des états mixtes

Nous avons observé ce renversement de la polarisation du trou dans une large gamme d'énergie d'excitation comprise entre 1.44 eV et 1.39 eV ; comme en témoignent les courbes des figures 4.7 (c) et (d) réalisées avec une énergie de pompe de 1.39 eV (sonde 1.35 eV). Dans cette plage d'énergie, la pompe excite le continuum des états mixtes formés des états délocalisés du puits quantique et des états discrets des boîtes quantiques [31, 33]. Les courbes

obtenues à un 1.44 eV et 1.39 eV sont similaires : le rapport entre le signal après impulsion et celui aux délais négatifs est quasiment identique [cf. figures 4.7 (a) et (c)]. De même, le comportement en fonction du champ est analogue [cf. figure 4.7 (b) et (d)]. Ces observations indiquent que l'efficacité du mécanisme de polarisation du spin résident est comparable entre ces deux énergies d'excitation. Rappelons que le mécanisme repose sur la dépolarisation préférentielle du spin du trou photocréé comparée à celle du spin de l'électron photocréé. Cela nous conduit à supposer qu'à une énergie de 1.39 eV, le caractère délocalisé des états mixtes est très marqué. En conséquence le trou, photocréé à une énergie de 1.39 eV, perd sa polarisation de spin rapidement avant d'être capturé.

### 4.2.2 Modélisation

Pour confirmer le mécanisme de polarisation proposé ci-dessus, nous avons réalisé une modélisation de la dynamique du signal de DCP. Les ingrédients de la modélisation sont très proches de ceux utilisés pour le cas résonnant : les dynamiques de spin du trou et de l'électron dans les boîtes quantiques sont régies par l'interaction hyperfine. La recombinaison radiative couple les deux dynamiques de spin. La seule différence avec le modèle résonnant concerne l'injection optique.

#### Dynamique entre les instants $t = 0^-$ et $t = 0^+$

L'évolution du système, entre l'instant juste antérieur à l'impulsion ( $t = 0^-$ ) et l'instant juste après excitation optique et capture ( $t = 0^+$ ), est décrite par des équations de bilan de populations. De manière à introduire un certain degré de polarisation après capture, nous supposons, que le trou et l'électron peuvent subir, dans des proportions différentes, des processus de retournement de spin dans la couche de mouillage. Nous considérons alors, dans la couche de mouillage, la présence d'excitons brillants et noirs :  $|CM \downarrow\uparrow, J_z = 1\rangle$ ,  $|CM \uparrow\downarrow, J_z = -1\rangle$ ,  $|CM \uparrow\uparrow, J_z = 2\rangle$ ,  $|CM \downarrow\downarrow, J_z = -2\rangle$ .

Soit  $N_{1(-1)}$  la densité d'excitons brillants de moment cinétique  $J_z = 1(-1)$  selon  $z$ ,  $N_{2(-2)}$  la densité des excitons noirs de moment cinétique  $J_z = 2(-2)$  selon  $z$ ,  $n_{\uparrow(\downarrow)}$  la densité de boîtes dont le trou est dans l'état  $|h \uparrow(\downarrow)\rangle$  et  $N_{T\uparrow(T\downarrow)}$  la densité de boîtes dont le trion est dans l'état  $|T \uparrow(\downarrow)\rangle$ . L'évolution de ces quantités, entre les instants  $t = 0^-$  et  $t = 0^+$ , est donnée par le jeu d'équations cinétiques suivant :

$$\begin{aligned}
 \frac{dN_2}{dt} &= -\gamma n_{\downarrow} N_2 - \frac{\Gamma_e}{2} (N_2 - N_1) - \frac{\Gamma_h}{2} (N_2 - N_{-1}) \\
 \frac{dN_{-2}}{dt} &= -\gamma n_{\uparrow} N_{-2} - \frac{\Gamma_e}{2} (N_{-2} - N_{-1}) - \frac{\Gamma_h}{2} (N_{-2} - N_1) \\
 \frac{dN_1}{dt} &= -\gamma n_{\downarrow} N_1 - \frac{\Gamma_e}{2} (N_1 - N_2) - \frac{\Gamma_h}{2} (N_1 - N_{-2}) \\
 \frac{dN_{-1}}{dt} &= -\gamma n_{\uparrow} N_{-1} - \frac{\Gamma_e}{2} (N_{-1} - N_{-2}) - \frac{\Gamma_h}{2} (N_{-1} - N_2)
 \end{aligned} \tag{4.27}$$

$$\begin{aligned}\frac{dn_{\uparrow}}{dt} &= -\gamma n_{\uparrow}(N_{-1} + N_{-2}) & \frac{dn_{\downarrow}}{dt} &= -\gamma n_{\downarrow}(N_1 + N_2) \\ \frac{dN_{T\uparrow}}{dt} &= \gamma(n_{\uparrow}N_{-1} + n_{\downarrow}N_2) & \frac{dN_{T\downarrow}}{dt} &= \gamma(n_{\uparrow}N_{-2} + n_{\downarrow}N_1)\end{aligned}$$

où  $\Gamma_{h(e)}$  est le taux de relaxation de spin moyen des trous (électrons) dans la couche de mouillage et  $\gamma$  le taux de capture moyen dans les niveaux discrets des boîtes quantiques. Nous faisons l'hypothèse que la densité  $N_0$  d'excitons créés par l'impulsion polarisée  $\sigma^+$  est petite devant la densité de boîtes quantiques sondées  $n_0$ . On suppose alors que la variation des densités  $n_{\uparrow}$  et  $n_{\downarrow}$ , entre les instants  $t = 0^-$  et  $t = 0^+$ , est suffisamment faible pour considérer :  $n_{\uparrow}(t) \simeq n_{\uparrow}(0^-)$  et  $n_{\downarrow}(t) \simeq n_{\downarrow}(0^-)$ . Cette condition appliquée au jeu d'équations (4.27) permet de rendre le système linéaire et ainsi soluble analytiquement.

Nous faisons également l'hypothèse raisonnable que le taux de relaxation de spin du trou dans la couche mouillage est bien supérieur, d'une part à celui de l'électron  $\Gamma_e$ , et d'autre part au taux  $\Gamma = \gamma \frac{n_0}{2}$ . On arrive ainsi à lier les polarisations du système, entre les instants  $t = 0^-$  et  $t = 0^+$ , de la manière suivante :

$$S_z^h(0^+) = \frac{1}{2}p_h f + [1 - f(1 - p_h)]S_z^h(0^-) \quad (4.28)$$

$$S_z^e(0^+) = -\frac{1}{2}f p_e \quad (4.29)$$

avec  $S_z^h = \frac{1}{2}(n_{\uparrow} - n_{\downarrow})$  et  $S_z^e = \frac{1}{2}(N_{T\uparrow} - N_{T\downarrow})$ . Les quantités  $p_h$  et  $p_e$  qui traduisent, respectivement le taux de polarisation de spin des trous et des électrons capturés dans les boîtes, sont donnés par les expressions suivantes :  $p_h = (1 + \Gamma_h/\Gamma)^{-1}$  et  $p_e = (1 + \Gamma_e/\Gamma)^{-1}$ .

### Dynamique du système après l'instant $t = 0^+$ , régime stationnaire

Les dynamiques de spin, après l'instant  $t = 0^+$ , des électrons dans l'état trion et des trous, sous interaction hyperfine, sont décrites dans la même approche que celle du modèle résonnant (cf. section 4.1.2). On calcule également les polarisations de spin du système dans le régime stationnaire à l'aide de l'équation (4.22).

### Bilan

Le résultat des simulations est présenté sur la figure 4.8. Les paramètres utilisés sont les suivants :  $p_e=0.9$ ,  $p_h=0.1$  et  $f = 0.5$ . Concernant la dynamique des polarisations de spin sous interaction hyperfine, les paramètres sont les mêmes que ceux utilisés dans la modélisation sous excitation résonnante à savoir :  $A^e = 55 \mu\text{eV}$ ,  $|C^h| = 4 \mu\text{eV}$ ,  $\beta = 0.42$ ,  $T_r = 790 \text{ ps}$ ,  $T_{\Delta}^e = 550 \text{ ps}$ ,  $|g_e| = 0.46$ ,  $|g_h| = 1.35$ . Précisons toutefois, que par simplicité numérique nous n'avons pas introduit, ici, de relaxation supplémentaire ( $T_1^h$ ).

Pour ce jeu de paramètres, l'accord qualitatif avec les résultats expérimentaux est bon. Les caractéristiques majeures du comportement de la polarisation de spin sont reproduites :

- un changement de signe de la polarisation de spin aux temps courts ( $\lesssim 1 \text{ ns}$ ), observable sur la dynamique temporelle [cf. figure 4.8 (b)],

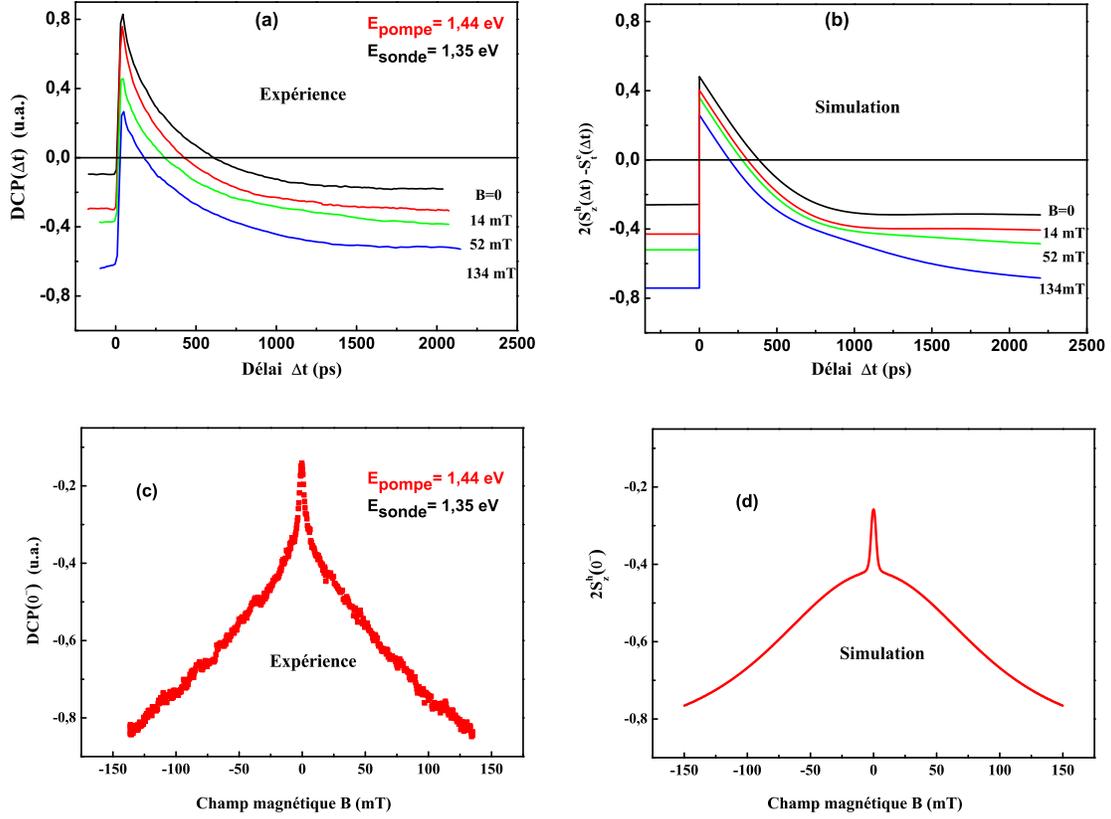


FIGURE 4.8: (a) Courbes de DCP résolues en temps pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué. (b) Simulation du taux de polarisation de spin  $2[S_z^h(t) - S_z^e(t)]$  en fonction du temps (c) Courbe de DCP pour un délai pompe-sonde  $\Delta t < 0 \simeq 13$  ns en fonction du champ magnétique appliqué. (d) Simulation du taux de polarisation  $2S_z^h(0^-)$  de spin des trous en fonction du champ.

- une augmentation manifeste de la polarisation de spin des trous en fonction du champ magnétique, à un délai pompe-sonde  $\Delta t = 0^- (\simeq 13$  ns), caractérisée par deux régimes distincts d'évolution liés respectivement à l'interaction hyperfine du trou et à celle de l'électron [cf. figure 4.8 (d)].

Cette modélisation permet de confirmer d'une part le mécanisme de polarisation proposé dans la configuration non résonnante, et d'autre part de confirmer le rôle majeur de l'interaction hyperfine dans les dynamiques de spin de l'électron et du trou sur les temps accessibles à la mesure.

Cependant, cette modélisation est une première approche de la dynamique de spin sous excitation non résonnante. En effet, le modèle présente des limites : le facteur  $f$ , supposé faible afin de rendre le système soluble analytiquement, est ajusté à la hauteur de 0.5 ; ceci nous amène à remettre en cause cette approximation. Le paramètre  $p_e$ , qui traduit la polarisation des électrons lorsqu'ils sont capturés dans les boîtes, est ajusté indépendamment du champ magnétique appliqué. Les ajustements conduisent à une valeur de  $p_e = 0.9$ , ce

qui semble élevée. En effet les expériences<sup>7</sup> de luminescence résolue en temps, menées sur notre échantillon au LPCNO par le groupe de X. Marie et T. Amand, renseignent sur une polarisation de trion à hauteur de 40 % sans champ magnétique appliqué

Une résolution numérique sans approximations, pourrait permettre, éventuellement, d'obtenir des simulations avec des paramètres plus fidèles aux constats expérimentaux.

### 4.2.3 Conclusion

Nous avons mis en évidence dans ce chapitre que l'on peut orienter optiquement le spin du trou résident des boîtes quantiques, et ce par pompage résonnant ou non résonnant.

Sous excitation résonnante, deux contributions de signe opposé participent à la polarisation de spin résidente. Celle provenant de l'émission spontanée du trion ainsi que celle issue de l'absorption résonnante de l'impulsion (contribution stimulée). La polarisation de spin résidente perdure au-delà du temps de vie radiatif des trions en raison de l'interaction hyperfine de l'électron dans l'état trion, qui limite ainsi la contribution issue de l'émission spontanée.

Dans le cas non résonnant, la polarisation de spin du trou est rendue possible grâce à la dépolarisation efficace du spin du trou photocréé dans la couche de mouillage. La polarisation de spin résidente est uniquement induite par l'émission spontanée du trion. Ce mécanisme conduit à une polarisation de spin résidente d'orientation moyenne opposée à celle du trou photocréé. Finalement, le choix de l'énergie d'excitation, permet d'orienter la polarisation de spin résidente indépendamment de celle du trion photocréé.

La mesure et la modélisation de la dynamique des polarisations de spin nous ont permis de démontrer que, de manière analogue à l'électron, l'interaction hyperfine domine la relaxation de spin du trou, sans champ magnétique appliqué et à basse température. Cette relaxation provient des termes transverses du couplage hyperfin trou-noyaux, qui sont induits par le mélange des niveaux de valence lourds et légers. Les caractéristiques de la relaxation dépendent du degré de mélange. Dans notre échantillon, elle se manifeste de manière partielle par un temps  $T_{\Delta}^h$  voisin de 10 ns. Ce mécanisme peut être écranté par un faible champ magnétique de l'ordre du millitesla.

Ces études nous ont permis également de révéler un mécanisme de relaxation supplémentaire du spin du trou. Dans la configuration résolue en temps sur 13 ns, la mesure de ce temps ( $T_1^h$ ) est trop imprécise, et le mécanisme sous-jacent ne peut pas être étudié. Afin d'identifier le où les mécanismes responsables de la relaxation de spin du trou sur un échelle de temps supérieure à la dizaine de nanosecondes, nous avons mis au point une nouvelle configuration expérimentale. Le principe et les résultats sont présentés dans le chapitre suivant.

---

7. Ces expériences ont été réalisées avec une énergie d'excitation comparable à la nôtre.



# Chapitre 5

## Dynamique longue du spin résident

### Sommaire

---

5.1	Motivation . . . . .	<b>94</b>
5.2	Principe de l'expérience pompe-sonde résolue en fréquence . . . . .	<b>95</b>
5.2.1	Principe . . . . .	95
5.2.2	Analyse fréquentielle du signal . . . . .	97
5.3	Dynamique de spin du trou sans champ magnétique . . . . .	<b>100</b>
5.3.1	Dichroïsme photoinduit analysé en fréquence . . . . .	100
5.3.2	Temps d'initialisation du spin . . . . .	102
5.4	Relaxation de spin du trou en fonction du champ magnétique . . . . .	<b>107</b>
5.4.1	Expérience . . . . .	108
5.4.2	Interaction hyperfine "longue portée", inhomogénéité de la fonction d'onde . . . . .	108
5.4.3	Environnement électrostatique . . . . .	113
5.5	Relaxation de spin du trou en fonction de la température . . . . .	<b>116</b>
5.5.1	Relaxation du spin via l'interaction spin-phonon . . . . .	116
5.5.2	Expérience . . . . .	118
5.6	Conclusion . . . . .	<b>120</b>

---

Nous avons vu, au chapitre 4, que le caractère mélangé des états de valence induit, à travers le couplage hyperfin avec les noyaux, une relaxation partielle du spin du trou dans un temps caractéristique d'environ 10 ns. Ce mécanisme, dominant la relaxation à champ nul, peut être écranté par un faible champ magnétique  $\simeq 5\text{mT}$ .

Nous nous intéressons, ici, à la dynamique du spin et aux processus qui surviennent au-delà de l'interaction hyperfine aux temps courts. Nous explorons l'évolution de la polarisation résidente de spin sur une fenêtre temporelle comprise entre  $\sim 100$  ns et 1 ms. Cette étude est rendue possible grâce à une technique originale basée sur la résolution fréquentielle du signal de dichroïsme circulaire photoinduit. La possibilité d'étudier la dynamique de spin sur une plage temporelle élargie, nous permet de mettre conjointement en relief un autre temps caractéristique du système : le temps d'initialisation de la polarisation de spin résidente sous le train d'impulsions pompes. L'étude de la dynamique de relaxation, en fonction du champ magnétique et de la température, nous amène à conclure sur le rôle joué par : l'interaction trou-phonon au second ordre, le caractère inhomogène de la fonction d'onde du trou et l'environnement électrostatique des boîtes quantiques.

## 5.1 Motivation

L'obtention de temps de cohérence  $T_2$  et de relaxation  $T_1$  longs est un critère majeur pour des futures applications utilisant le spin électronique comme vecteur d'information. En conséquence, ces dernières années, de nombreuses études ont porté sur les processus de relaxation et de décohérence des porteurs de spin dans les boîtes quantiques. De ces travaux, il ressort que la source principale de relaxation, en présence d'un champ magnétique longitudinal modéré ou fort ( $2 - 10\text{T}$ ), est le mécanisme basé sur l'absorption ou l'émission d'un phonon assisté par le couplage spin-orbite, ceci aussi bien pour le spin de l'électron que pour celui du trou [1, 78, 79, 80, 81, 70].

Concernant le temps de relaxation qu'implique ce mécanisme, Elzerman et coll. [82] observent un temps de relaxation de l'électron  $T_1^e \sim 1$  ms pour un champ de 8 T sur une boîte quantique formée par un gaz d'électrons bi-dimensionnel confiné électriquement. D'autres travaux, menés sur des boîtes d'InAs/GaAs, confirment un temps de relaxation de l'ordre de la milliseconde pour le spin de l'électron [83, 84] en présence d'un champ magnétique du même ordre de grandeur. L'étude concernant le trou, menée par Heiss et coll. [71], conduit à un temps  $T_1^h$  d'environ  $\sim 100$   $\mu\text{s}$  avec un champ magnétique compris entre de 2 et 5 T, soit un ordre de grandeur plus faible que celui de l'électron. Si le processus basé sur l'absorption ou l'émission d'un phonon assisté par le couplage spin-orbite traduit bien les comportements expérimentaux observés pour des champs magnétiques supérieurs à 2 T [80, 70], il ne peut rendre compte des processus mis en jeu pour les faibles champs magnétiques [72, 73]. C'est dans ce contexte que se situe notre étude.

La problématique de ce chapitre est la suivante : quels sont, au-delà de  $\sim 10 - 100$  ns, les mécanismes responsables de la relaxation de spin du trou dans la gamme des faibles champs magnétiques ? Et pendant combien de temps une information de spin est-elle disponible sur

le trou résident ?

Avant d'apporter des éléments de réponse à cette question, nous présentons tout d'abord la méthode expérimentale que nous avons mise au point afin d'explorer des dynamiques temporelles de 100 ns à 1 ms. Nous discutons ensuite de la mesure et de l'origine du temps d'initialisation  $\tau_i$  du spin. Nous terminons ce chapitre par une discussion sur les processus responsables de la relaxation de spin du trou au-delà de la relaxation hyperfine aux temps courts. Nous argumentons cette discussion en nous appuyant sur les mesures du temps de relaxation  $T_1$  en fonction de la température et du champ magnétique.

## 5.2 Principe de l'expérience pompe-sonde résolue en fréquence

Cette étude a nécessité des modifications expérimentales de notre dispositif. En effet, avec une expérience pompe-sonde résolue en temps sur 13 ns, nous ne sommes pas sensibles à des dynamiques s'exprimant sur un temps caractéristique supérieur à la centaine de nanosecondes. La méthode que nous utilisons est basée sur la mesure du dichroïsme circulaire photoinduit (DCP) en fonction de la fréquence de modulation d'intensité du faisceau pompe. Nous en détaillons le principe dans cette partie.

### 5.2.1 Principe

La ligne à retard est positionnée de façon à séparer les faisceaux pompe et sonde d'un délai temporel  $\Delta t \simeq 13$  ns, ce qui nous assure de mesurer un signal provenant uniquement de la polarisation du trou. Dans le montage expérimental un modulateur acousto-optique (MAO) est introduit sur le chemin du faisceau pompe, après la ligne à retard. Ainsi le MAO, piloté par un générateur de fonctions de fréquence variable  $\omega_m$ , nous permet de moduler l'excitation de l'échantillon.

#### Effet de la modulation

La figure 5.1 décrit l'effet de la modulation sur le faisceau pompe et sur le signal de polarisation du trou. Le générateur délivre une succession périodique d'intervalles clairs  $T_c$  et sombres  $T_s$  à une fréquence  $\omega_m$  (cf. figure 5.1 (a)). Pendant le temps clair (état haut du modulateur), les faisceaux pompe et sonde passent à travers l'échantillon. En revanche pendant le temps sombre, le modulateur coupe le faisceau pompe et seule la sonde traverse l'échantillon.

#### Description phénoménologique de la dynamique de spin

A ce stade, l'expérience est similaire à celle décrite dans les précédents chapitres. La subtilité vient de la description du comportement du signal à l'échelle du temps de modulation

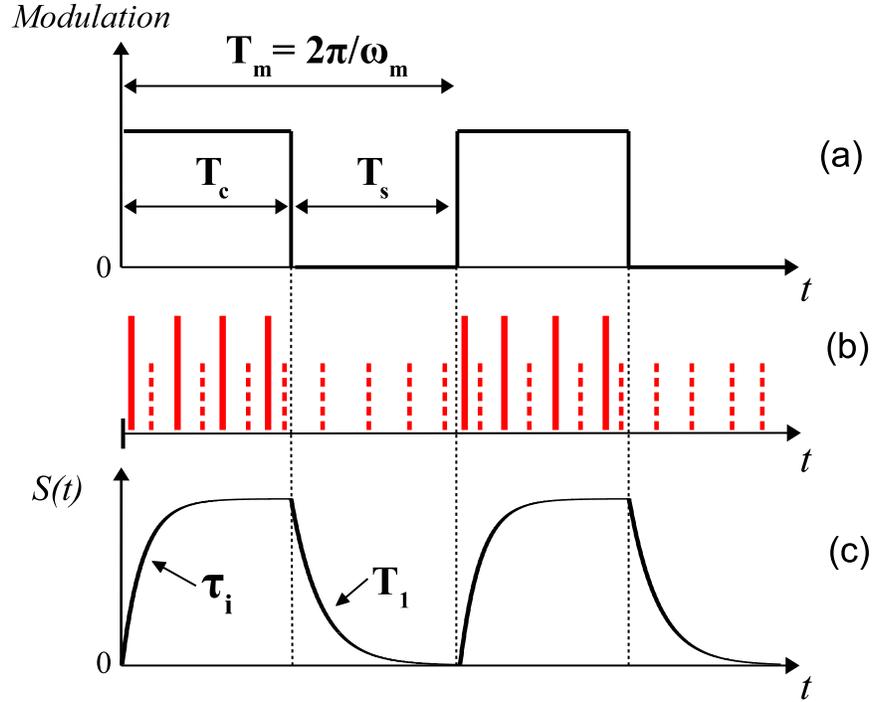


FIGURE 5.1: Schéma illustrant la méthode expérimentale utilisée pour explorer les dynamiques longues. (a) Fonction de modulation d'intensité imposée par le modulateur acousto-optique au faisceau pompe. (b) Impulsions pompe (traits épais) et sonde (traits en pointillé) en fonction du temps. (c) Comportement temporel du signal  $S(t)$  de DCP en fonction des intervalles clairs et sombres de la modulation.

[figure 5.1 (c)].

- Pendant les phases claires, le système est optiquement pompé, la polarisation de spin augmente jusqu'à atteindre un régime stationnaire où l'effet de chaque pulse pompe est le même (nous détaillons cette phase d'initialisation dans la section 5.3.2). Le temps  $\tau_i$  d'initialisation est caractéristique de ce comportement.
- Pendant les phases sombres, la pompe ne passe plus à travers l'échantillon, la polarisation résidente de trou n'est plus entretenue. Le système relaxe librement dans un temps caractéristique  $T_1$ , durant le temps sombre  $T_s$ .

La sonde mesure l'état du système toutes les 13 ns pendant les phases d'initialisation et de relaxation.

Le signal de dichroïsme circulaire  $S(t)$ , proportionnel à la polarisation de spin du trou  $[S \alpha (\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow})]$ , est périodique ( $T_m$ ). En postulant des comportements exponentiels de la dynamique de spin dans les phases claires et sombres,  $S(t)$  se décrit formellement de la

manière suivante :

$$\left. \begin{aligned} S(t) &= A(\epsilon)[1 - \eta e^{-\frac{t}{\tau_i}}], 0 \leq t \leq T_c \\ S(t) &= A(\epsilon)[1 - \eta e^{-\frac{T_c}{\tau_i}}] e^{-\frac{(t-T_c)}{T_1}}, T_c \leq t \leq T_m \end{aligned} \right\} \text{ avec } \eta = \frac{1 - e^{-\frac{T_s}{T_1}}}{1 - e^{-\frac{T_c}{\tau_i} - \frac{T_s}{T_1}}} \quad (5.1)$$

où  $T_m = T_c + T_s$  et  $\omega_m = \frac{2\pi}{T_m}$ .  $A(\epsilon)$  est un coefficient d'amplitude dépendant du paramètre d'expérience  $\epsilon$  (délai pompe-sonde, champ magnétique, puissance d'excitation, énergie d'excitation).

### 5.2.2 Analyse fréquentielle du signal

Pour des raisons de rapport signal à bruit évoquées au chapitre 2, le signal temporel  $S(t)$  est difficilement analysable. Nous en faisons donc une analyse synchrone. Du point de vue de la détection, cela consiste à envoyer le signal  $S(t)$  dans un jeu de détections synchrones afin d'y être démodulé. En imposant à la détection une fréquence de référence égale à celle du modulateur  $\omega_m$ , on extrait le coefficient de Fourier de l'harmonique choisie (cf. chap. 2). On peut décomposer  $S(t)$  de la manière suivante :

$$S(t) = A(\epsilon) \sum_{n=0}^{+\infty} a_n \cos(n\omega_m t + \varphi_n) \quad (5.2)$$

où  $a_n$  est le module du coefficient de Fourier de la  $n^{\text{ième}}$  harmonique. Le module du signal de dichroïsme finalement extrait est donné par :

$$|S_n| = \left| \frac{\omega_m}{\pi} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega_m}} S(t) e^{-in\omega_m t} dt \right| = |A(\epsilon)| a_n(\omega_m) \quad (5.3)$$

La détection du signal en phase et en quadrature (cf. chapitre 3) permet également d'obtenir la phase  $\varphi_n$  de la  $n^{\text{ième}}$  composante.

Ces considérations sont générales. Afin de mieux cerner le principe de la méthode que nous utilisons, nous établissons la distinction entre la configuration traditionnelle (cf. chapitre 4) et celle que nous présentons ici.

### Configuration résolue en temps

Dans la configuration traditionnelle, la modulation d'intensité est maintenue constante tout au long de l'expérience :  $\omega_m$  et  $a_n(\omega_m)$  sont fixés. En revanche le paramètre d'expérience  $\epsilon$  varie au cours de l'acquisition. Ainsi, le signal mesuré  $S_n(\epsilon)$  évolue uniquement à travers le paramètre d'amplitude  $A(\epsilon)$ . Si  $\epsilon$  est le délai-pompe-sonde, on résout, dans cette configuration, la dynamique de spin du système sur 13 ns (délai pompe-sonde maximal).

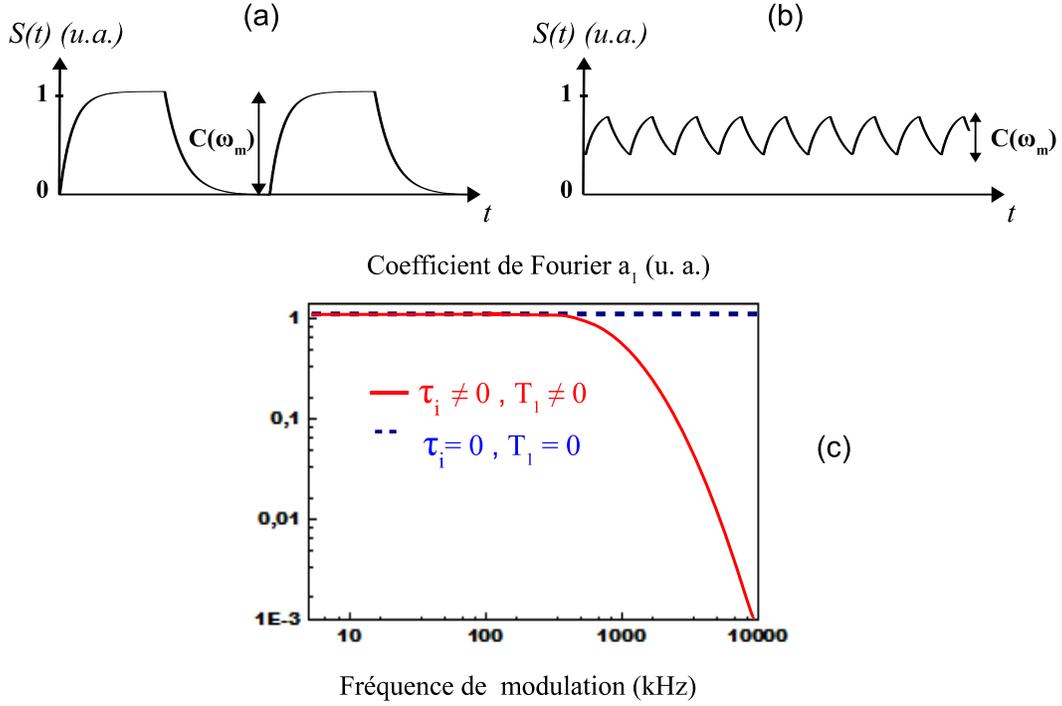


FIGURE 5.2: (a) et (b) Effet de la fréquence de modulation  $\omega_m$  sur le contraste du signal  $C(\omega_m)$ , avec  $T_c = T_s = T_m/2$ . La fréquence  $\omega_m$  en (a) est inférieure aux taux caractéristiques du système ( $\tau_i^{-1}, T_1^{-1}$ ), en (b) elle est supérieure. (c) Simulation du module du coefficient de Fourier  $a_1(\omega_m)$  de la première harmonique du signal en fonction de la fréquence de modulation. La courbe rouge (trait plein) est simulée pour des temps caractéristiques ( $\tau_i, T_1$ ) de l'ordre de la microseconde. La courbe bleue (en pointillé) simule une fonction dont les temps caractéristiques sont nuls à l'échelle de la période de modulation.

### Configuration résolue en fréquence

On s'intéresse, ici, à la réponse fréquentielle du système  $S_n(\omega_m)$ . Le délai pompe-sonde est maintenu fixe et on explore une gamme de fréquences de modulation  $\omega_m$ . Contrairement au cas précédent, le signal  $S_n(\omega_m)$  évolue uniquement à travers les coefficients de Fourier  $a_n(\omega_m)$ .

Les équations (5.1) et (5.3) indiquent que les coefficients  $a_n$  dépendent de la fréquence de modulation  $\omega_m$  et des temps caractéristiques  $\tau_i$  et  $T_1$  de la dynamique de spin du trou. Ainsi l'analyse de cette dépendance, dans une plage de fréquences adéquates, nous renseigne sur les temps d'initialisation et de relaxation.

La figure 5.2(c), où est simulé le module  $a_1(\omega_m)$  de la première harmonique du signal  $S$  en fonction de la fréquence de modulation  $\omega_m$ , illustre ce propos. Le coefficient  $a_1(\omega_m)$  marque une coupure pour une certaine fréquence. Cette fréquence de coupure ainsi que l'allure de la décroissance sont des caractéristiques des temps  $\tau_i$  et  $T_1$ . En revanche pour un signal (en bleu) dont les temps caractéristiques sont nuls à l'échelle de la période de modulation, la

réponse fréquentielle est plate.

Une manière plus intuitive d'illustrer notre méthode est la variation du contraste de  $S(t)$  en fonction de  $\omega_m$ . Cela est illustré sur la figure 5.2 (a, b).

Lorsque  $\omega_m$  est inférieure aux taux caractéristiques du système  $(\tau_i^{-1}, T_1^{-1})$  :

- le temps d'initialisation  $\tau_i$  est inférieur au temps clair  $T_c$ , la polarisation de spin se construit jusqu'à atteindre le régime stationnaire,
- le temps de relaxation  $T_1$  est inférieur au temps sombre  $T_s$ , le système relaxe complètement sa polarisation de spin.

Dans cette situation, le contraste  $C(\omega_m)$  du signal est maximal. En revanche lorsque  $\omega_m$  est suffisamment grande par rapport au couple  $(\tau_i^{-1}, T_1^{-1})$ , le système n'atteint pas le régime stationnaire lors des phases claires, et la polarisation ne relaxe plus entièrement durant les phases sombres. Le contraste chute. Cette variation du contraste de  $S(t)$  avec  $\omega_m$  se ressent à travers le module et les phases des coefficients de Fourier des harmoniques de la fonction  $S(t)$ .

### Les différentes configurations d'analyse

En pratique, on réalise une acquisition fréquentielle de la phase et du module d'une harmonique choisie du signal. Cette courbe est ensuite confrontée à une simulation [cf. expressions (5.2) et (5.1)] afin de déterminer les temps caractéristiques  $\tau_i$  et  $T_1$  du système. On extrait ainsi les temps caractéristiques pour des dynamiques temporelles comprises entre 100 ns et 1 ms. La limite basse provient des fronts de montée et de descente du modulateur, qui sont voisins de 50 ns. La limite haute est imposée par le rapport signal à bruit. En effet, pour maintenir un niveau acceptable de détection, la fréquence de modulation doit être au minimum de l'ordre du kilohertz, ce qui ne permet pas de résoudre des dynamiques de spin supérieures à la milliseconde.

Plusieurs configurations d'acquisition sont possibles :

- Soit on explore les fréquences de modulation en maintenant le rapport cyclique  $\alpha$  constant (le rapport cyclique est défini par  $\alpha = T_c/T_m$ ).
- Soit le rapport cyclique de modulation évolue avec la fréquence, dans le but de maintenir le temps clair ou le temps sombre constant.

La seconde configuration présente une plus grande sensibilité aux temps caractéristiques du système. De plus, la gamme de fréquences nécessairement explorée pour obtenir une signature caractéristique est plus petite que dans la première configuration avec  $\alpha$  constant. Cela présente un avantage car certains des appareils du montage, comme les détecteurs synchrones et les photodiodes, ont également une réponse fréquentielle. En effet, si la plage de fréquence explorée est trop grande, le signal doit être normalisé par cette réponse, ce qui ajoute de l'incertitude à la mesure expérimentale.

En conclusion, notre protocole repose sur l'analyse fréquentielle du signal  $S(t)$  de dichroïsme

à l'échelle de la période de modulation de l'excitation optique. Expérimentalement, il requiert uniquement l'utilisation d'un modulateur d'intensité optique fonctionnant dans une plage de fréquences contenant les taux caractéristiques  $\tau_i^{-1}$  et  $T_1^{-1}$ . La principale limite de notre dispositif est qu'il ne permet pas de décrire de manière exacte le comportement temporel de la polarisation, mais seulement d'en extraire les temps caractéristiques. Il est justifié si la dynamique de spin, à l'échelle de la période de modulation, est de type exponentielle. Ajoutons qu'il nous est également possible, à travers l'analyse fréquentielle, de reconstruire le comportement temporel de la dynamique de spin. Les détections synchrones nous donnent accès au module et à la phase des sept premières harmoniques de  $S(t)$ . La somme de ces composantes, pour une fréquence de modulation adéquate, permet de construire partiellement la dynamique temporelle. Nous discutons de cette configuration, en nous appuyant sur des résultats expérimentaux, dans l'annexe B.

### 5.3 Dynamique de spin du trou sans champ magnétique

Nous présentons, ici, les courbes expérimentales concernant la dynamique de spin sans champ magnétique appliqué. Les temps d'initialisation et de relaxation sont extraits à l'aide de la technique basée sur l'analyse fréquentielle décrite dans la partie précédente.

#### 5.3.1 Dichroïsme photoinduit analysé en fréquence

##### Expérience

La figure 5.3 présente les résultats de l'expérience de DCP résolue en fréquence, sans champ magnétique appliqué. L'expérience est réalisée à 2 K. Le module et la phase des trois premières composantes de Fourier du signal de polarisation de spin du trou sont obtenus en fonction de la fréquence de modulation. Dans cette expérience, le rapport cyclique de modulation évolue en fonction de la fréquence ; le temps clair est maintenu constant à  $T_c = 10 \mu\text{s}$  et le temps sombre  $T_s$  évolue de  $190 \mu\text{s}$  à  $100 \text{ ns}$  (pour une plage de fréquences  $(T_c + T_s)^{-1}$  de  $5 \text{ kHz}$  à  $99 \text{ kHz}$ ).

Le système est donc toujours pompé de manière identique. En revanche, le temps qui lui est accordé pour relaxer en spin diminue avec la fréquence. Sur les trois courbes, à l'aide des expressions (5.1) et (5.3), le module et la phase des harmoniques sont ajustés simultanément aux données expérimentales avec comme seuls paramètres  $\tau_i$  et  $T_1$  (courbes en rouge).

Pour comparaison, nous avons ajouté des simulations correspondant aux deux cas suivants : (i) les courbes vertes qui représentent un signal où les dynamiques d'initialisation et de relaxation de spin sont instantanées sur la plage temporelle de modulation ( $T_1 = 0$ ,  $\tau_i = 0$ ); (ii) les courbes bleues où seulement la phase d'initialisation est instantanée ( $\tau_i = 0$ ).

Ces simulations ne peuvent pas rendre compte des résultats expérimentaux. On observe donc bien une signature des dynamiques d'initialisation et de relaxation en fonction des fréquences (temps sombres) explorées. Les simulations (courbes en rouge) qui en tiennent compte fournissent des ajustements très satisfaisants des points expérimentaux.

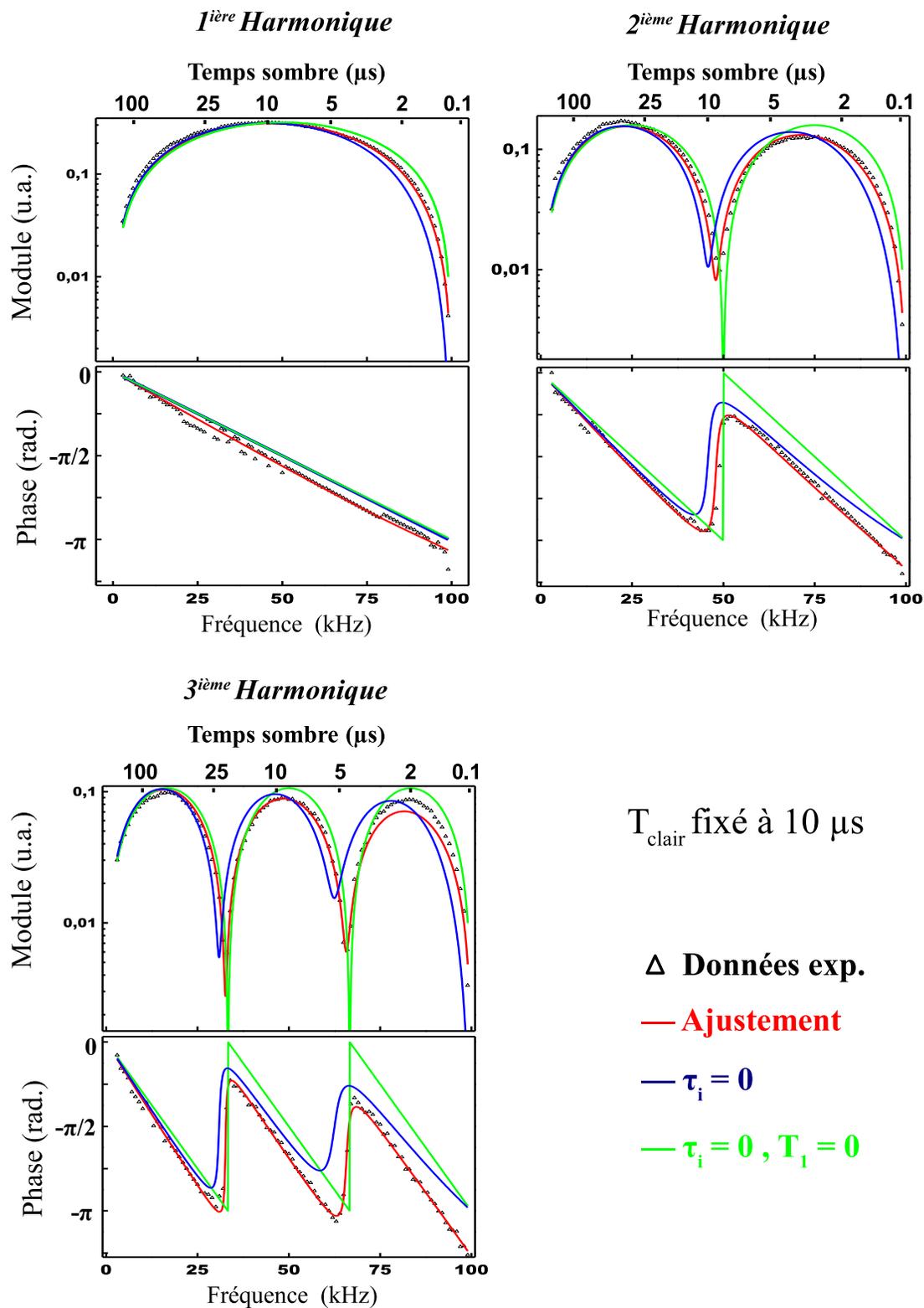


FIGURE 5.3: Données expérimentales (triangles) et simulations (traits pleins) du module et de la phase des trois premières composantes de Fourier du signal de DCP, en fonction de la fréquence de modulation et du temps sombre [85]. Le temps clair est fixé à  $10 \mu\text{s}$ . La configuration d'excitation est résonnante : Les énergies de pompe et de sonde sont dégénérées à  $1.35 \text{ eV}$ .

### Bilan expérimental

On extrait de l'ajustement des trois courbes  $\tau_i = 380, 490, 600$  ns ( $\pm 50$  ns) et  $T_1 = 890, 995, 850$  ns ( $\pm 50$  ns), pour la 1<sup>ière</sup>, 2<sup>ième</sup> et 3<sup>ième</sup> harmonique du signal respectivement. Les ajustements rendent compte notamment de l'amplitude et de la position des maxima, ainsi que des singularités sur la phase pour les trois harmoniques. Par exemple, sur la seconde harmonique, pour une fréquence de 50 kHz le rapport cyclique est de 50 % ( $T_c = T_s$ ), et la non-nullité du signal en ce point est une signature de la dynamique des boîtes. En effet, un signal de type créneau (avec  $T_c = T_s$ ) ne possède pas d'harmoniques paires.

D'un point de vue expérimental, plus l'harmonique détectée est élevée plus la sensibilité de l'ajustement est grande. Cependant, le rapport signal à bruit diminue avec le rang de l'harmonique. On obtient un bon compromis entre ces deux critères avec la seconde harmonique.

Le temps de relaxation  $T_1$  converge vers une valeur voisine de 900 ns. Rappelons que cette mesure est rendue possible car le couplage hyperfin aux temps courts ( $T_\Delta^h \simeq 10$ ns) entraîne une relaxation partielle de la polarisation de spin du trou. Ce résultat correspond à la première mesure de la relaxation du trou sans champ magnétique appliqué. L'étude des mécanismes, responsables de cette relaxation de l'ordre de la microseconde, est l'objet des prochaines parties de ce chapitre.

La mesure du temps d'initialisation, en revanche, est dispersée entre les trois harmoniques (380, 490, 600 ns) car les trois expériences correspondantes n'ont pas été réalisées dans les mêmes conditions d'excitation. L'initialisation de la polarisation de spin par le train d'impulsions pompe dépend, entre autres, de la puissance optique. C'est ce dont il est question dans le paragraphe suivant.

#### Remarque

Nous avons également réalisé une expérience où la dynamique temporelle de spin du trou est partiellement reconstruite. Nous obtenons des temps caractéristiques cohérents avec l'expérience décrite ci-dessus. La description de l'expérience et de ses limites se trouve dans l'annexe B.

### 5.3.2 Temps d'initialisation du spin

Le temps d'initialisation représente le temps caractéristique pour polariser au mieux le spin du trou. Contrairement au temps de relaxation  $T_1$ , le temps d'initialisation  $\tau_i$  n'est pas un temps intrinsèque au système. Il dépend certes de paramètres propres aux boîtes quantiques mais également des conditions d'excitation.

Sous excitation continue, plusieurs études, concernant la phase d'initialisation du spin, ont été menées sous champ magnétique en configuration Voigt [86, 87] et Faraday [88]. Il ressort de ces études que le temps d'initialisation en configuration Voigt est de trois ordres de grandeur plus petit qu'en configuration Faraday, mais le taux de polarisation atteint est

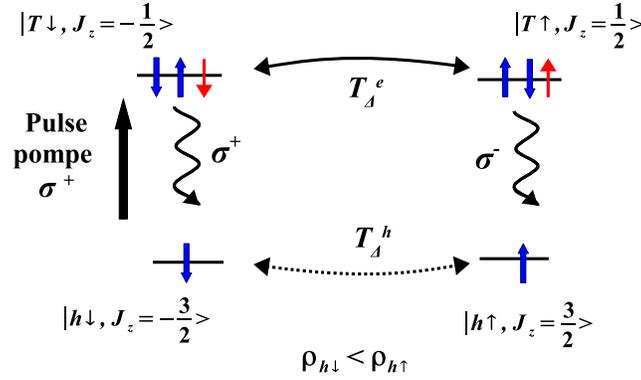


FIGURE 5.4: Mécanisme de polarisation du trou sous excitation résonnante.

inférieur.

Nous présentons, ici, une étude du temps d'initialisation de la polarisation de spin du trou, sur notre échantillon de boîtes quantiques dopées p. Cette étude est menée sans champ magnétique appliqué et sous excitation pulsée résonnante.

### Mécanisme d'initialisation

Le temps de relaxation de la polarisation résidente est supérieur à la période de répétition du laser. C'est cette relation qui explique la présence d'une phase d'initialisation du spin. Afin de préciser ce propos, la figure 5.4 rappelle le mécanisme de polarisation du spin sous excitation résonnante (cf. chapitre 4).

1. Initialement les populations de spin sont à l'équilibre thermodynamique  $\rho_{h\uparrow} = \rho_{h\downarrow} = \frac{1}{2}$ . La polarisation de spin du trou ( $S_z^h \propto \rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}$ ) est nulle.
2. Le pulse pompe, ici  $\sigma^+$ , vide la population de trou  $\rho_{h\downarrow}$  et peuple la population de trion  $\rho_{T\downarrow}$ . Des polarisations de spin dans l'état excité et dans l'état fondamental sont créées. La polarisation de spin du trion photocréée relaxe par couplage hyperfin et l'état de trion  $|T\uparrow\rangle$  devient ainsi occupé.
3. Après recombinaison radiative, la polarisation de spin du trou demeure. Cette polarisation relaxe partiellement, par interaction hyperfine en  $\simeq 10$  ns, pendant la période séparant deux impulsions.

Ainsi, lorsque l'impulsion de pompe suivante arrive après 13 ns,  $S_z^h$  est non nulle. Le schéma de la figure 5.4 se répète, mais les conditions initiales des populations de spin du trou sont différentes. La polarisation du trou va donc successivement augmenter, suite à chaque impulsion pompe, jusqu'à atteindre un régime stationnaire. Une fois dans ce régime, l'effet de chaque impulsion sur le système est le même. C'est le temps caractéristique  $\tau_i$  pour atteindre le régime stationnaire que nous mettons en évidence dans cette étude.

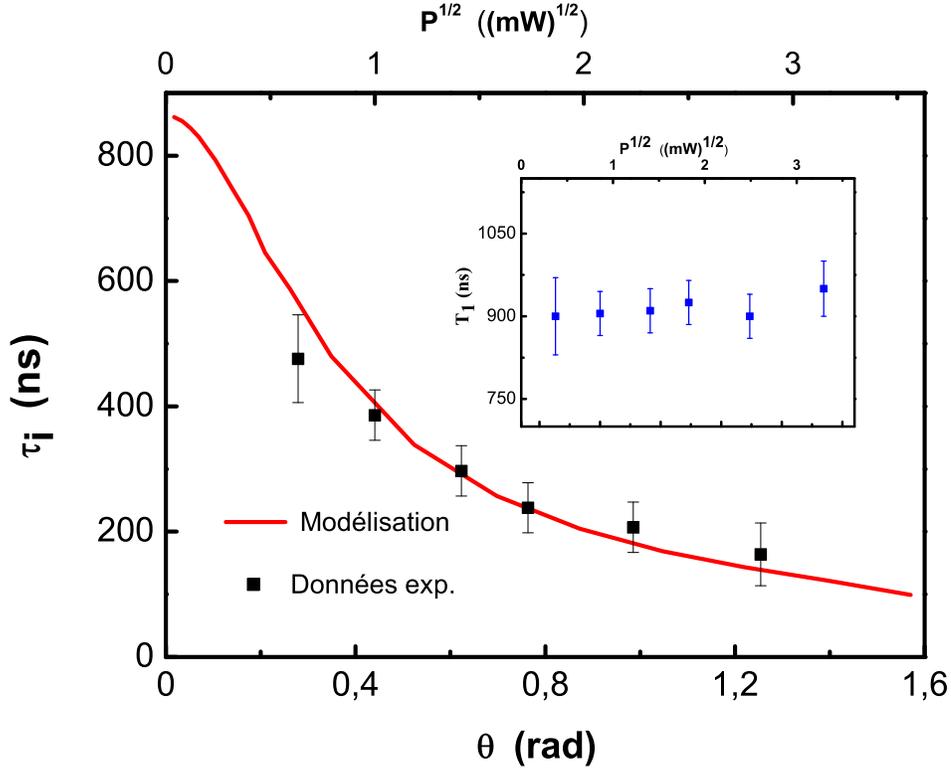


FIGURE 5.5: (a) Temps d'initialisation  $\tau_i$  en fonction de la racine de la puissance moyenne des impulsions pompe [85]. La simulation en fonction de l'angle de Rabi est obtenue pour une dispersion de 50%. Le paramètre d'ajustement est le coefficient  $C$  de proportionnalité entre l'angle de Rabi et la puissance optique (cf. texte). (b) Temps de relaxation  $T_1$  en fonction de la puissance moyenne des impulsions pompe. Les mesures de  $\tau_i$  et  $T_1$  sont obtenues lors de la même expérience.

### Mesure du temps d'initialisation en fonction de la puissance d'excitation

Le mécanisme de polarisation du trou (cf. figure 5.4) repose sur le retournement du spin du trion photocréé. On s'attend donc à ce que le temps d'initialisation  $\tau_i$  évolue avec la puissance moyenne  $P$  d'excitation. En effet, sous excitation résonnante, la probabilité  $G_{exc}$  de peupler un état de trion dépend de l'aire  $\theta$  du pulse pompe :

$$G_{exc} \propto \sin^2 \frac{\theta}{2}, \text{ avec } \theta = C\sqrt{P} \quad (5.4)$$

où  $C$  est un coefficient de couplage proportionnel au moment dipolaire électrique de la transition optique.

La figure 5.5 (a) présente les résultats de la mesure du temps d'initialisation en fonction de la puissance moyenne des impulsions pompe. On constate effectivement que  $\tau_i$  dépend de la puissance d'excitation. Il décroît, comme attendu, lorsque l'on augmente la puissance moyenne  $P$ . En revanche, on n'observe pas d'oscillations. Cela s'explique par l'inhomogénéité

de l'échantillon. Sur l'ensemble des boîtes étudiées dans l'échantillon certaines propriétés sont dispersées, notamment le moment dipolaire électrique. Les points expérimentaux de la figure 5.5 (a) sont le reflet de cette dispersion.

A l'aide du modèle présenté au chapitre 4, on peut calculer la dynamique d'initialisation de la polarisation de spin du trou et ainsi le temps caractéristique  $\tau_i$  (courbe rouge). La modélisation<sup>1</sup> rend compte d'une dispersion du couplage  $C$  à la hauteur de 50%, avec un bon accord expérimental. A forte puissance, la distribution du couplage  $C$  sur les boîtes quantiques entraîne un angle de Rabi moyen de  $\pi/2$ . Dans ces conditions, sur l'ensemble des boîtes analysées, la phase d'initialisation de la polarisation de spin du trou est optimisée. La polarisation de spin atteint le régime stationnaire au bout d'un temps voisin de 100 ns, ce qui correspond à une succession de huit impulsions seulement.

Précisons que pour tous les points expérimentaux, la mesure du temps de relaxation est constante à hauteur de  $T_1 \simeq 1 \mu\text{s}$  [cf. figure 5.5 (b)].

### Initialisation en fonction des paramètres intrinsèques au système

La phase d'initialisation dépend également de paramètres propres aux boîtes quantiques étudiées. Nous discutons dans cette partie des contributions respectives de ces différents paramètres.

La figure 5.6 présente l'évolution du taux de polarisation de spin du trou en fonction de la succession d'impulsions pompe, cela pour différentes valeurs du coefficient  $\beta$  de mélange trou lourd-trou léger. Le degré de mélange contrôle la relaxation du trou liée à l'interaction hyperfine ( $T_{\Delta}^h$ ). Le modèle utilisé est également celui du chapitre 4. Rappelons que ce modèle tient compte de l'aire  $\theta$  des impulsions de pompe, des relaxations des polarisations du trou et du trion ( $T_{\Delta}^h$ ,  $T_{\Delta}^e$ ), de la recombinaison radiative ( $T_r$ ) et de la période de répétition des impulsions. L'aire  $\theta$  est ici fixée à  $\pi$ , et le calcul ne tient pas compte de la dispersion du couplage  $C$ .

On constate, premièrement, que le comportement de la polarisation en fonction du nombre d'impulsions est de type quasi exponentiel. Le temps d'initialisation peut donc bien être défini à  $(1 - 1/e)$  de la valeur à saturation. Cela valide la description phénoménologique de la phase d'initialisation utilisée pour l'analyse fréquentielle du signal (cf. 5.2.1). D'autre part, lorsque  $\beta$  parcourt une gamme de valeurs<sup>2</sup> comprises entre 0.5 et 0.05 :

- le taux de polarisation  $\rho_h = \rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}$  évolue de 20 % à 90 %,
- le nombre d'impulsions nécessaires pour initialiser le spin du trou varie de 3 à 4.

1. Les paramètres utilisés pour la modélisation sont les mêmes que ceux obtenus dans le chapitre 4 et la référence [68]. Les seules variables d'ajustement sont, ici, le coefficient de couplage  $C$  et sa dispersion sur les boîtes analysées.

2. Une valeur de  $\beta$  de 0.5 correspond à un état de trou fortement mélangé. En revanche, une valeur de  $\beta$  de 0.05 reflète un état de trou lourd quasiment pur.

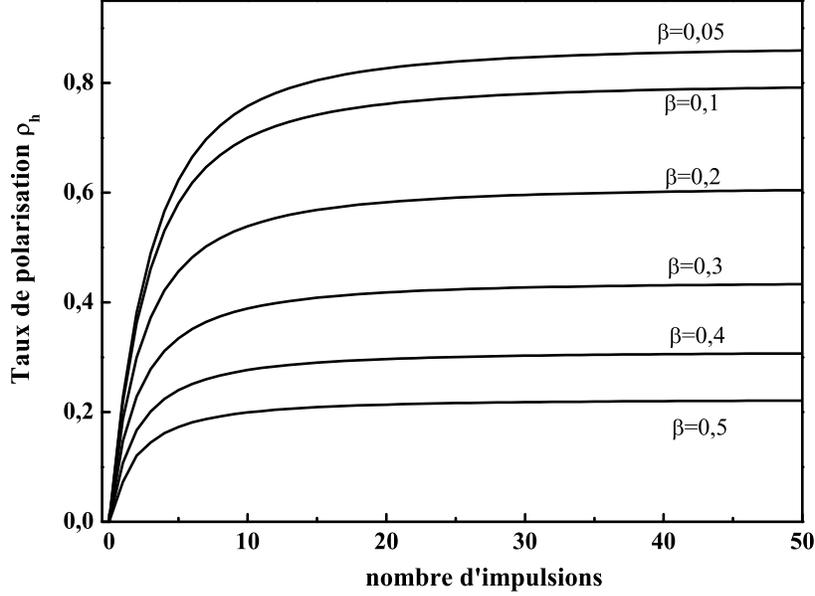


FIGURE 5.6: Modélisation du taux de polarisation du trou ( $\rho_h = \rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}$ ) en fonction du nombre d'impulsions, pour différentes valeurs du coefficient  $\beta$  de mélange entre les états de trous lourds et légers.

Le caractère mélangé du trou contrôle le niveau de polarisation atteint dans le régime stationnaire. Mais il influe peu sur le temps nécessaire  $\tau_i$  pour y parvenir. L'explication repose sur le mécanisme de polarisation du trou par les impulsions de pompe :

Après le pompage par une impulsion polarisée  $\sigma^+$ , la relaxation de spin et la recombinaison du trion (voir figure 5.4) : une proportion  $\delta$  de la population de l'état  $|h\downarrow\rangle$  est transférée à l'état  $|h\uparrow\rangle$ . Cette quantité  $\delta$  est indépendante de  $\beta$ , mais dépend en revanche, du rapport entre  $T_\Delta^e$  et  $T_r$ . Elle vérifie l'équation suivante [85] :

$$\delta(x) = \sin^2 \frac{\theta}{2} W(x) \quad (5.5)$$

$$\text{avec } W(x) = \frac{1}{3} [1 - 2x^2(1 - \sqrt{\pi}x e^{x^2} \operatorname{erfc}(x))] \text{ et } x = \frac{T_\Delta^e}{T_r}$$

où  $\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^\infty e^{-\zeta^2} d\zeta$ . Avec  $T_\Delta^e = 500$  ps et  $T_r = 800$  ps, on obtient  $\delta = 23\%$ . Un pourcentage de cet ordre entraîne que, même si le trou relaxe en partie jusqu'à l'arrivée de l'impulsion pompe suivante, l'initialisation de spin est réalisée au bout de typiquement quatre impulsions<sup>3</sup>, et cela indépendamment du niveau de polarisation atteint.

Finalement, le temps d'initialisation du trou dépend également de paramètres propres à l'état excité de trion. Il est optimisé si la polarisation de spin du trion relaxe suffisamment pendant son temps de vie radiatif, et ce indépendamment du caractère mélangé du trou.

3. Le temps de relaxation  $T_1$  n'a pas d'influence pour des aires d'impulsions  $\theta$  proches de  $\pi$ . En revanche pour les faibles  $\theta$ , la quantité  $\delta$  est très faible et le temps d'initialisation est borné par le temps  $T_1$ .

Avec  $T_{\Delta}^e < T_r$ , notre système est favorable à une initialisation efficace de la polarisation de spin du trou par les impulsions pompe [85].

### Remarque

Bien que les mesures soient effectuées sur le spin du trou à un délai pompe-sonde  $\simeq 13$  ns, l'établissement du régime stationnaire concerne la dynamique complète du système. Les populations photocrées de trions sont nulles avant l'arrivée de chaque impulsion pompe ( $T_r \ll 13$  ns). Mais elles dépendent, sous excitation résonnante, des populations de trous juste avant l'arrivée du pulse. Les populations du trion photocréé suivent donc également l'établissement du régime stationnaire<sup>4</sup>.

## 5.4 Relaxation de spin du trou en fonction du champ magnétique

Nous avons mis en évidence, dans la partie précédente, un temps de relaxation  $T_1$  de spin du trou voisin d'une microseconde à champ magnétique nul. Il nous faut maintenant identifier les mécanismes responsables de cette relaxation. Les candidats possibles, évoqués théoriquement, sont les suivants :

- Le mécanisme lié à l'inhomogénéité de la fonction d'onde dans le couplage hyperfin. Ce mécanisme se manifeste sur des temps longs [9, 8, 89, 15, 14]. Pour ne pas induire de confusion à ce sujet, nous appelons ce mécanisme "interaction hyperfine aux temps longs", afin de le distinguer du couplage hyperfin "aux temps courts" discuté dans le chapitre précédent, qui se manifeste sur un temps caractéristique  $T_{\Delta}^h \simeq 10$  ns.
- Les mécanismes de relaxation du spin qui reposent sur l'interaction trou-phonon couplée à l'interaction spin-orbite [80, 70, 71, 72, 73].

L'efficacité de ces processus dépende du champ magnétique, mais dans des proportions différentes. En effet, les mécanismes reposant sur l'interaction trou-phonon couplée à l'interaction spin-orbite sont d'une part peu sensibles à la séparation Zeeman des niveaux d'énergie dans la région des faibles champs magnétiques, et d'autre part s'affirment sur des temps de l'ordre de la milliseconde à une température de 2 K.

En revanche, l'efficacité du mécanisme, lié à l'inhomogénéité de la fonction d'onde dans le couplage hyperfin, est maximale à champ nul. De plus, ce mécanisme peut être, a priori, écarté par l'application d'un faible champ magnétique.

L'évolution du temps de relaxation du trou  $T_1$  en fonction du champ magnétique devrait nous permettre d'identifier le rôle joué par chacun de ces processus. C'est dans ce contexte que se situe l'étude que nous présentons dans cette partie.

---

4. Cette considération est propre au régime d'excitation résonnante. Sous excitation non résonnante (cf. chapitre 4), les populations photocrées par l'impulsion pompe ne dépendent pas des populations de trous. Etant donné, que les populations photocrées sont nulles avant l'arrivée de chaque pulse, il n'y a donc pas de régime transitoire concernant la polarisation photocréée : l'établissement du régime stationnaire concerne uniquement les populations résidentes de trous.

### 5.4.1 Expérience

La figure 5.7 présente les résultats d’une expérience de dichroïsme circulaire menée en détection fréquentielle en configuration Faraday. Le temps  $T_1$  de relaxation de spin du trou est étudié en fonction d’un champ magnétique en configuration Faraday, sur une plage de 0 à 2 T.

On constate deux régimes d’évolution du temps  $T_1$ . Tout d’abord,  $T_1$  augmente rapidement sur une gamme de la dizaine de mT [figure 5.7 (b)], dans une largeur de champ caractéristique d’environ 5 mT. On observe ensuite une croissance plus lente, et finalement  $T_1$  plafonne autour de  $2.5 \mu\text{s}$  à partir d’une centaine de mT. Sans faire de conclusions hâtives, on peut supposer que deux mécanismes s’affirment ici : un premier, dont le temps de relaxation diverge avec le champ, et un second, indépendant du champ, qui explique le plafonnement du temps  $T_1$  au-delà d’une centaine de mT.

### 5.4.2 Interaction hyperfine “longue portée”, inhomogénéité de la fonction d’onde

La région où le temps de relaxation plafonne en fonction du champ, à hauteur d’environ  $2.5 \mu\text{s}$ , est l’objet de la section 5.4.3. Nous discutons ici de l’évolution de  $T_1$  dans la région de champ magnétique comprise entre 0 et 30 mT [cf. figure 5.7 (b)]. Dans cette gamme de champs, la valeur du temps de relaxation  $T_1$  double. Comme nous l’avons mentionné, pour les champs magnétiques de cet ordre les mécanismes de relaxation de spin via l’interaction trou-phonon et le couplage spin-orbite sont, d’une part, inefficaces à 2K, et d’autre part indépendants du champ sur la gamme en question [70, 71, 72, 73]. Sur l’ensemble des mécanismes proposés théoriquement, seule une manifestation du processus hyperfin aux temps longs peut expliquer un accroissement du  $T_1$  dans une gamme de champ de la dizaine de mT.

Nous discutons, ici, certains points du couplage hyperfin afin de mettre en relief les effets dus à l’inhomogénéité de la fonction d’onde.

#### Couplage homogène : relaxation aux temps courts

Aux chapitres 3 et 4, nous avons présenté des approches permettant de modéliser la relaxation des porteurs de spin induite par le couplage hyperfin [3, 57, 63]. Ces modèles, très satisfaisants pour décrire la dynamique à court terme, ne prennent pas en compte l’inhomogénéité de la fonction d’onde du porteur de spin : le couplage entre l’électron (ou le trou) et chaque noyau de la boîte quantique est uniforme. La relaxation partielle du spin s’effectue sur un temps caractéristique  $T_{\Delta}^e \simeq 500 \text{ ps}$  pour un électron et  $T_{\Delta}^h \simeq 10 \text{ ns}$  pour un trou mélangé<sup>5</sup>. Au-delà de cette relaxation, la polarisation de spin demeure constante. Dans la description classique sur un ensemble de boîtes [3, 63], l’environnement nucléaire

---

5. Ce temps dépend du coefficient de mélange lourd-léger, la valeur de 10 ns est propre à notre échantillon.

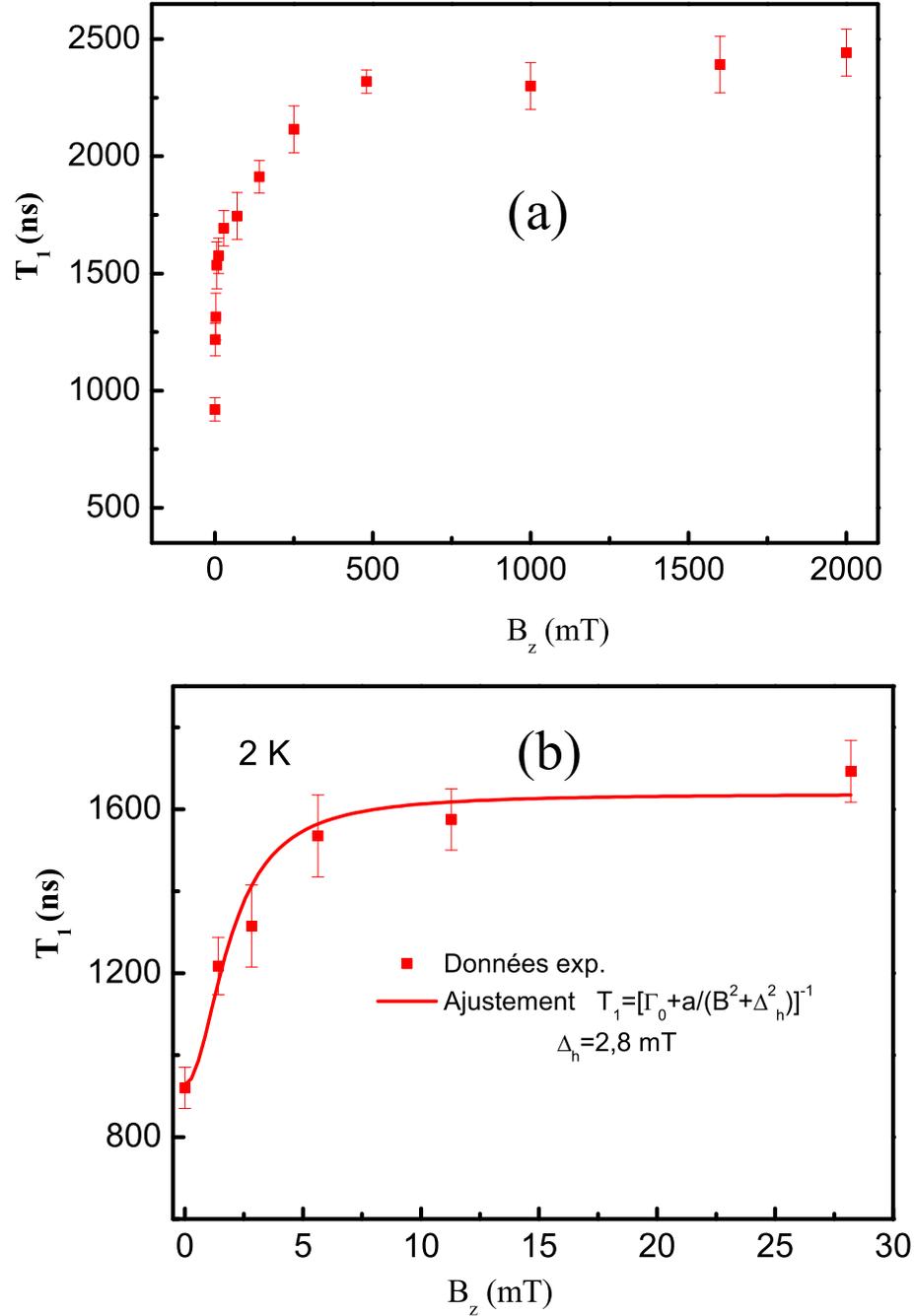


FIGURE 5.7: (a) Évolution du temps de relaxation  $T_1$  en fonction du champ magnétique longitudinal  $B_z$ . (b) Figure agrandie dans la région 0-30 mT; l'ajustement lorentzien :  $T_1 = \Gamma_1^{-1} = [\Gamma_0 + a/(B_z^2 + \Delta_h^2)]^{-1}$  est caractérisé par une largeur à mi-hauteur  $2\Delta_h \simeq 5$  mT .

est statique : les fluctuations du champ hyperfin sont gelées, celui-ci est fixe dans chaque boîte quantique et est distribué spatialement en direction et en amplitude sur l'ensemble.

### Couplage inhomogène et dynamique du bain nucléaire : relaxation aux temps courts et aux temps longs

Les travaux théoriques prenant en compte l'inhomogénéité de la fonction d'onde rendent compte de deux dynamiques de relaxation [9, 8, 89, 15, 14, 90]. D'une part la dynamique de relaxation à court terme, qui est identique à celle obtenue dans l'approche uniforme. Cette dynamique correspond à la précession du spin des porteurs (électrons ou trous) dans le champ hyperfin effectif statique.

D'autre part, ces travaux mettent en évidence un second régime de relaxation du spin, qui se manifeste sur des temps bien plus longs et qui est associé à la variation du champ hyperfin. Ce second régime requiert la prise en compte de deux ingrédients : la dispersion du couplage hyperfin et la dynamique de spin interne au bain nucléaire. On peut le comprendre simplement. Prenons un système constitué d'un électron ( $\vec{S}$ ) et de deux noyaux ( $\vec{I}_1, \vec{I}_2$ ) tels que  $\vec{I}_1 \neq \vec{I}_2$ . L'hamiltonien hyperfin est donné par :

$$H \propto \vec{S} \cdot (a_1 \vec{I}_1 + a_2 \vec{I}_2) = \vec{S} \cdot \vec{h} = S_x h_x + S_y h_y + S_z h_z \quad (5.6)$$

où  $a_n$  est la densité électronique à l'endroit du noyau considéré, et  $\vec{h}$  est le champ hyperfin tel que  $\langle \vec{h} \rangle = a_1 \langle \vec{I}_1 \rangle + a_2 \langle \vec{I}_2 \rangle$ . Supposons qu'il existe des mécanismes (nous détaillons ce point par la suite) permettant un processus flip-flop entre les spins des deux noyaux. Un tel processus conduit à une modification des composantes des spins nucléaires ; s'il affecte, par exemple les composantes selon  $z$ , les valeurs moyennes des observables nucléaires deviennent :

$$\langle \vec{I}_1 \rangle = (I_1^x, I_1^y, I_1^z \pm 1) \quad \langle \vec{I}_2 \rangle = (I_2^x, I_2^y, I_2^z \mp 1) \quad (5.7)$$

Si la fonction d'onde de l'électron est homogène :  $a_1 = a_2 = a$ , l'électron est uniquement sensible à la somme des spins nucléaires :

$$\langle \vec{h}' \rangle = \langle \vec{h} \rangle = a(\langle \vec{I}_1 \rangle + \langle \vec{I}_2 \rangle) \quad (5.8)$$

Du point de vue de l'électron, le champ hyperfin est statique bien que le bain nucléaire soit dynamique. En revanche, si la fonction d'onde est inhomogène  $a_1 \neq a_2$ , cela conduit à :

$$\langle \vec{h}' \rangle = \langle \vec{h} \rangle \pm (a_1 - a_2) \vec{e}_z \quad (5.9)$$

Dans ce cas, l'électron perçoit un champ hyperfin en mouvement. Ce mouvement du champ hyperfin entraîne une relaxation supplémentaire du spin de l'électron. Cette relaxation a lieu sur le temps caractéristique de la dynamique du bain nucléaire. Précisons que cette illustration s'applique aussi bien à un électron qu'à un trou (à condition qu'il soit mélangé), le caractère anisotrope du couplage hyperfin du trou n'entame pas la généralité du propos.

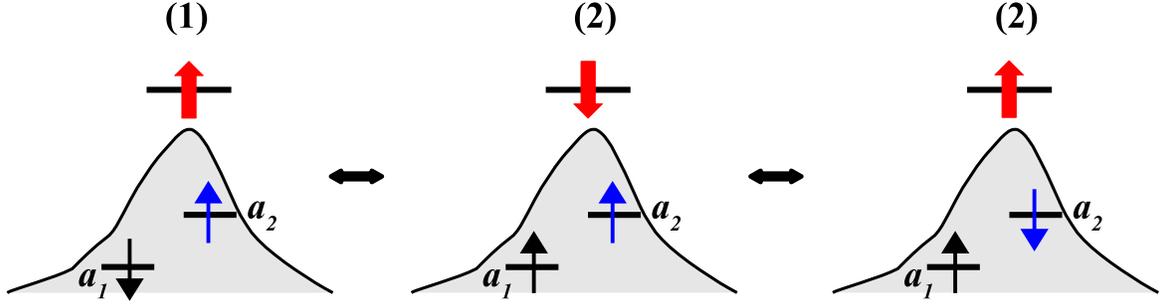


FIGURE 5.8: Schéma d'un processus illustrant le couplage indirect entre noyaux (cf. texte). L'enveloppe grise représente la dispersion spatiale de la fonction d'onde du porteur. La flèche rouge désigne le spin du porteur (électron ou trou), la flèche noire et la flèche bleue désignent deux spins nucléaires.  $a_{1,2}$  sont les densités électroniques du porteur à l'endroit des noyaux considérés, tels que  $a_1 \neq a_2$  (ici :  $I_1 = I_2 = \frac{1}{2}$ ).

### Dynamique du bain nucléaire

Expérimentalement nous avons observé un temps de relaxation du trou de l'ordre de la microseconde, qui augmente notablement pour un champ magnétique d'environ 5 mT [cf. figure 5.7 (b)]. En partant du principe que le temps caractéristique de l'interaction hyperfine aux temps longs est imposé par la dynamique du bain nucléaire, il nous faut maintenant identifier les mécanismes responsables de cette dynamique nucléaire. Nous en distinguons deux :

- Le couplage direct des spins nucléaires à travers l'interaction dipôle-dipôle [54].
- Le couplage indirect des noyaux induit par le processus hyperfin au second ordre [91, 92].

Le premier mécanisme se manifeste sur des temps de l'ordre de la milliseconde. De plus, un champ inférieur au millitesla permet d'écranter le champ local dipôle-dipôle et de rendre ainsi le mécanisme inefficace [93]. Ces deux caractéristiques ne correspondent pas à nos observations expérimentales [cf. figure 5.7 (b)].

L'interaction hyperfine au second ordre est basée sur deux processus successifs de flip-flop mettant en jeu le spin du porteur avec le spin de deux noyaux différents. Ce couplage indirect conserve le spin nucléaire total  $\vec{I}_1 + \vec{I}_2$  et celui du porteur  $\vec{S}$ . Cependant, à la fin du processus, les deux noyaux ont échangé du moment cinétique et le champ hyperfin perçu par l'électron est modifié. La figure 5.8 illustre ce processus. Dans une boîte quantique, le porteur est en contact avec un très grand nombre de noyaux  $N$ . Au bout d'un temps suffisamment long, l'interaction hyperfine au second ordre entraîne une redistribution significative des spins nucléaires dans la boîte quantique et une variation importante du champ nucléaire<sup>6</sup>.

6. Précisons que la discussion ne porte pas ici sur la polarisation dynamique des noyaux. En effet, le porteur électronique n'étant pas renouvelé (le système n'est plus pompé pendant les temps sombres), indépendamment du nombre de processus flip-flop électron-noyau réalisés, le spin nucléaire total est modifié

***Temps caractéristique long***

La description classique de ce processus au second ordre correspond à la précession du champ nucléaire dans le champ inhomogène du porteur (champ Knight). Les auteurs des références [3, 9, 94] donnent une expression littérale de ce temps :

$$T_N^{e,h} \sim \sqrt{N} T_\Delta^{e,h} \sim \hbar N / |A^{e,h}| \quad (5.10)$$

où  $A^{e(h)}$  est la constante hyperfine de l'électron (du trou). Avec  $N \sim 10^5$  et  $|A^h| \simeq 5 \mu\text{eV}$  on aboutit à :

$$T_N^h \sim 1 \mu\text{s} \quad (5.11)$$

Ce temps concorde avec nos mesures. Ajoutons que B. Pal et coll. [95] mesurent un temps de relaxation de l'électron, sans champ magnétique appliqué,  $T_N^e = 1 \mu\text{s}$  sur un ensemble de boîtes quantiques d'InP dopées n. Ils interprètent également ce temps comme étant associé à la dynamique des spins nucléaires induite par l'interaction hyperfine. Leurs boîtes quantiques d'InP contiennent plus de noyaux que nos boîtes d'InAs. Avec  $N \sim 10^6$  et une constante hyperfine de l'électron dix fois plus grande que celle du trou, ce temps est cohérent avec nos mesures.

Les modélisations du comportement temporel de la dynamique de spin aux temps longs sont complexes. Cependant, les auteurs des références [8, 9, 15, 14] rendent compte d'une dynamique de relaxation du spin non exponentielle<sup>7</sup>, qui dépend de la forme de la fonction d'onde du porteur.

***Évolution avec le champ appliqué***

Nous avons supposé que l'évolution rapide du temps de relaxation  $T_1$  avec le champ magnétique était manifeste du couplage hyperfine aux temps longs (entre 0 et 5 mT la valeur du temps de relaxation  $T_1$  double [cf. figure 5.7 (b)]). En effet, a priori, aucun autre mécanisme n'est sensible à un champ magnétique de cet ordre (cf. introduction 5.4). De plus, l'ajustement de l'évolution du  $T_1$  en fonction du champ [cf. figure 5.7 (b)] conduit à une évolution lorentzienne du taux de relaxation  $\Gamma_1$  :

$$T_1 = \Gamma_1^{-1} = [\Gamma_0 + \Gamma_N^h(B)]^{-1} \quad \text{avec} \quad \Gamma_N(B) = [a/(B_z^2 + \Delta_h^2)] \quad (5.12)$$

où la largeur caractéristique  $2\Delta_h$  à mi-hauteur est voisine de 5 mT. Cette valeur est également le champ nécessaire pour écranter le mécanisme hyperfin aux temps courts, que nous avons mis en évidence au chapitre 4. Cependant, aucune étude théorique du mécanisme hyperfin aux temps longs n'a été menée dans cette gamme de champ, et une modélisation fine de ce processus sur notre système d'étude est bien en dehors du cadre de cette thèse.

---

au mieux de  $\pm 1$ , et le taux de polarisation nucléaire varie d'une quantité négligeable  $\sim \pm 1/N$ .

7. Notre technique fréquentielle ne permet pas d'étudier le comportement temporel de la relaxation de spin. On extrait uniquement le temps caractéristique de la fonction exponentielle approchant le plus de la fonction réelle.

## Bilan

La valeur du temps caractéristique  $T_1$  à faible champ magnétique ainsi que son évolution avec ce dernier, sont cohérentes avec la manifestation du couplage hyperfin aux temps longs. Néanmoins l'interaction hyperfine n'est pas seule responsable de la relaxation du trou dans notre système. En effet, lorsque celle-ci est écrantée par le champ magnétique le temps de relaxation ne diverge pas : au-delà de quelques dizaines de milliteslas le temps de relaxation  $T_1$  plafonne autour de deux microsecondes [cf. figure 5.7 (a)]. Nous avons supposé que les mécanismes responsables de la relaxation aux temps longs pouvaient être de deux natures : le couplage hyperfin inhomogène et l'interaction trou-phonon assistée par le couplage spin-orbite. Aucun de ces mécanismes n'est cohérent avec un temps  $T_1 \simeq 2 \mu\text{s}$  pour un champ magnétique compris entre  $\simeq 30 \text{ mT}$  et  $2 \text{ T}$ . En effet, d'une part l'interaction hyperfine est écrantée et, d'autre part, les mécanismes spin-phonon se caractérisent par des temps de trois ordres de grandeur supérieurs [80, 70, 71, 72, 73]. Il y a donc un autre mécanisme de relaxation du trou, qui semble a priori indépendant du champ jusqu'à  $2 \text{ T}$ .

Jusqu'à présent, nous avons négligé le rôle de l'environnement électrostatique des boîtes quantiques, dû à la présence des plans d'atomes accepteurs. En effet, pour obtenir un dopage en trous dans les boîtes, le plan d'atomes de carbone est placé à environ  $2 \text{ nm}$  de chaque plan de boîtes. La proximité du plan d'accepteurs peut entraîner qu'une partie de la fonction d'onde du trou est localisée sur un atome de carbone. Cette composante hybride du trou peut donner lieu à une relaxation de spin du trou. Nous explorons cette piste dans la section suivante.

### 5.4.3 Environnement électrostatique

Le calcul présenté ici ne fait absolument pas office de démonstration. Il s'agit juste de présenter l'effet, éventuel, de l'environnement sur la relaxation de spin du trou. La distance ( $\sim 2 \text{ nm}$ ) entre le plan d'accepteurs et le plan de boîtes quantiques est du même ordre que le rayon de Bohr d'un atome accepteur. Nous supposons donc que dans chaque boîte quantique une certaine proportion de la fonction d'onde du trou est localisée sur un site accepteur. Autrement dit, les trous de l'ensemble des boîtes se trouvent localisés sur les différents sites accepteurs d'un plan de dopage pendant une certaine fraction du temps.

Une fois dans le plan d'accepteurs, les trous vont subir une relaxation de spin liée au couplage spin-orbite associée à l'interaction d'échange.

Nous estimons ici le temps de relaxation de spin dans un plan d'accepteurs où chaque site est occupé par un trou. Ce temps de relaxation, multiplié par la fraction de la fonction d'onde localisée dans le plan d'accepteurs, permet d'aboutir au temps effectif de relaxation du trou, par ce mécanisme, dans les boîtes quantiques.

### Temps de corrélation

Lorsque la distance moyenne  $r_{12}$  entre deux sites accepteurs est suffisamment petite, le recouvrement des fonctions d'onde du trou entre deux sites est exalté. Le système est alors gouverné par l'interaction d'échange qui va permettre à chaque trou d'effectuer un saut tunnel d'un site à l'autre. La valeur de l'interaction d'échange  $J(r_{12})$  permet d'estimer le temps de corrélation  $\tau_c$  qui définit le temps de résidence du trou sur un site donné entre deux évènements tunnels. La relation entre le temps de corrélation et l'énergie d'échange est la suivante [6] :

$$\tau_c \simeq \frac{\hbar}{J(r_{12})} \quad (5.13)$$

D'après la référence [96], la distance moyenne entre deux sites voisins dans un plan est donnée par :

$$r_{12} = 0.5n_0^{-\frac{1}{2}} \quad (5.14)$$

où  $n_0$  est la densité surfacique des accepteurs. Cette statistique s'explique par le fait que toutes les distances inter-sites ne sont pas équiprobables. Il est alors possible d'estimer l'interaction d'échange à partir de l'équation établie par I. V. Ponomarev et coll. [97] :

$$J(r_{12}) = 0.770(1 + 0.23R_{12}^2)^{5/4} \exp[-0.1R_{12} - 1.210R_{12} \tan^{-1}(0.484R_{12})]E_B \quad (5.15)$$

où  $R_{12} = \frac{r_{12}}{a_b}$  avec  $a_b$  le rayon de Bohr du trou sur le site accepteur et  $E_B$  son énergie de liaison. Cette expression est établie pour l'interaction d'échange entre deux électrons localisés sur des donneurs. On peut raisonnablement supposer que son expression est conservée pour deux trous localisés sur des accepteurs.

Concernant l'énergie de liaison et le rayon de Bohr sur un site accepteur, dans les publications [98, 99] ces paramètres sont évalués expérimentalement à  $E_B \simeq 26$  meV et  $a_b \simeq 2$  nm, pour des accepteurs constitués d'atomes de carbone insérés dans du GaAs.

Pour l'échantillon étudié, la densité d'accepteurs est  $n_0 = 2.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>, ce qui conduit, avec l'expression 5.14, à une distance moyenne entre deux sites  $r_{12} \simeq 10$  nm et ainsi à  $R_{12} \simeq 5$ . Avec les expressions (5.13) et (5.15) on aboutit finalement à :

$$\tau_c \simeq 10 \text{ ps}$$

### Terme d'échange anisotrope et couplage spin-orbite

L'interaction d'échange, si elle est isotrope, conserve le spin total des deux porteurs lors de l'échange de leurs positions par sauts tunnels. Ce processus n'induit pas de relaxation du spin. Cependant K. V. Kavokin a montré qu'il existe une contribution anisotrope à cette interaction, provenant du couplage spin-orbite [2]. A cause de cette anisotropie les sauts tunnels deviennent source de relaxation : quand deux porteurs échangent leurs positions, leurs spins subissent, chacun en sens inverse de l'autre, une rotation d'un angle  $\gamma$ , sous l'effet du champ spin-orbite. L'axe de cette rotation et son amplitude  $\gamma$  dépendent de l'orientation des spins de chacun des porteurs. Le taux de relaxation  $\Gamma^{ech}$  associé à cette contribution

anisotrope fait intervenir le temps de corrélation  $\tau_c$  et la moyenne quadratique de l'angle  $\gamma$  à travers la relation :

$$\Gamma^{ech} = \frac{2}{3} \langle \gamma^2 \rangle \frac{1}{\tau_c} \quad (5.16)$$

En ne considérant que le terme linéaire en  $\vec{k}$  du couplage spin-orbite pour les trous lourds, le calcul de Kavokin conduit à l'expression suivante de  $\langle \gamma^2 \rangle$  [100] :

$$\sqrt{\langle \gamma^2 \rangle} = \frac{4\sqrt{3}}{\hbar^2} m_{x,y}^h \chi r_{12} \quad (5.17)$$

où  $m_{x,y}^h$  est la masse effective des trous lourds selon les directions (x, y) du plan d'accepteurs (l'axe de croissance de l'échantillon est suivant z) et  $\chi$  le coefficient du terme linéaire en  $\vec{k}$  du couplage spin-orbite. D'après M. Cardona et coll. [101],  $\chi$  vaut  $0.34 \cdot 10^{-10}$  eV.cm pour le GaAs. Si on considère que la masse du trou lourd localisé sur le site accepteur est proche de celle du massif de GaAs [102], on peut prendre alors  $m_{x,y}^h = 0.11m_0$  [103]. On arrive finalement à :

$$\Gamma^{ech} \simeq 100 \mu\text{s}^{-1}$$

Si on tient compte, maintenant, de la fraction de temps  $\alpha$  où les trous sont dans le plan d'accepteurs, le taux effectif de relaxation de ce mécanisme est  $\Gamma^{env} = \alpha \Gamma^{ech}$ . Avec  $\alpha \sim 1\%$  on aboutirait à  $\Gamma^{env} \sim 1 \mu\text{s}^{-1}$  et à un temps de relaxation du trou  $T^{env} \sim 1 \mu\text{s}$ , ce qui pourrait être cohérent avec nos mesures expérimentales (cf. figure 5.7).

## Bilan

A ce stade il est impossible de confirmer ou d'infirmer si ce canal de relaxation est effectif dans notre système. En effet, même si l'hypothèse d'une localisation partielle de la fonction d'onde dans le plan d'accepteurs paraît cohérente, il nous est impossible d'estimer la quantité  $\alpha$ . De plus, l'énergie d'échange [cf. expression 5.15] dépend très fortement du rayon de Bohr et de la distance moyenne inter-site, ce qui rend l'estimation de  $T^{env}$  incertaine. En effet une erreur de 20 % sur un de ces deux paramètres conduit à un facteur d'environ 20 sur le temps de relaxation. En outre, nous n'avons pas tenu compte de l'influence du champ magnétique dans ce calcul. Néanmoins, avec l'appui de la référence [100], on peut estimer l'énergie associée au champ spin-orbite :  $h_{s,o} = 2\sqrt{3}\chi 2\pi/r_{12} \simeq 0.7$  meV. L'énergie Zeeman  $h_Z$  est d'environ<sup>8</sup> 0.15 meV pour un champ de 1 Tesla. On peut donc supposer que le mécanisme est peu affecté par des champs appliqués jusqu'au Tesla.

A terme, une étude comparative du temps de relaxation du trou  $T_1$ , pour des échantillons où la distance entre le plan de boîtes et le plan d'accepteurs est différente, pourrait permettre de mieux cerner le rôle de ce mécanisme dans la relaxation de spin du trou. De même, une étude théorique approfondie de l'influence d'un accepteur au voisinage de la boîte quantique serait d'une grande utilité. Cependant, il s'agit d'un travail conséquent, qui nécessite la prise en

8. Le facteur de Landé du trou, sur des atomes de carbone donneurs, est mesuré à 0.6 dans la référence [104].

compte de l'anisotropie des masses des trous lourds et légers, l'effet du couplage spin-orbite ainsi que l'interaction coulombienne [102].

## 5.5 Relaxation de spin du trou en fonction de la température

Nous avons, dans ce chapitre, plusieurs fois mentionné les mécanismes spin-phonon basés sur l'interaction trou-phonon et le couplage spin-orbite. Cependant les expériences en fonction du champ magnétique à 2 K n'ont pas révélées la manifestation de ce couplage sur la relaxation du trou. Afin, d'une part, d'étudier la robustesse du temps de vie de spin  $T_1$  du trou en fonction de la température, et d'autre part, d'approfondir notre étude sur la relaxation de spin du trou, nous présentons une étude du  $T_1$  en fonction de la température. Nous commençons par présenter les mécanismes en jeu ainsi que leurs évolutions attendues en fonction de la température.

### 5.5.1 Relaxation du spin via l'interaction spin-phonon

#### Principe

Sans anisotropie des contraintes, l'interaction trou-phonon est diagonale en spin et ne couple donc pas directement les deux états de spin du trou lourd pur. Cependant le couplage spin-orbite, pris en considération dans l'hamiltonien de Luttinger-Kohn, permet un mélange entre les états de trous lourds et légers (cf chapitre 3). Les nouveaux états propres, qui ne sont pas purs en spin, sont alors couplés par l'interaction trou-phonon ce qui induit une relaxation de spin entre ces états.

En résumé, le couplage spin-orbite est le médiateur d'une interaction effective spin-phonon. L'énergie caractéristique des phonons optiques, voisine de 30 meV, est trop grande, comparée aux énergies mises en jeu entre les deux états de spin du trou, pour participer au couplage trou-phonon. Les interactions trou-phonon à considérer sont donc celles qui engagent des phonons acoustiques ( $\sim 1\text{meV}$ ).

Les modes de vibrations acoustiques correspondent à une contrainte du cristal qui induit un déplacement en phase des atomes d'une même maille. Deux types d'interactions sont à distinguer. L'interaction provenant de l'effet piezo-électrique qui traduit la contrainte induite par un champ électrique (et réciproquement) [21]. Cette interaction s'exprime pour des phonons dont la longueur d'onde est supérieure à la dimension caractéristique des boîtes.

La seconde interaction trou-phonon à considérer est induite par le potentiel de déformation des boîtes quantiques. Si les contraintes sont isotropes, l'hamiltonien décrivant cette interaction est diagonal en spin. En revanche, dans le cas de contraintes anisotropes, il possède la même symétrie que l'hamiltonien de Bir-Pikus. Il peut donc induire des couplages entre des états de trous lourds mélangés, mais également entre deux états de trous dont les fonctions d'ondes sont pures en spin. Les expressions de ces hamiltoniens sont décrites en détail dans les références [80, 70].

Les interactions trou-phonon sont analysées en termes d'absorption et d'émission de phonon. On ne tient compte que des processus élémentaires faisant intervenir un ou deux phonons.

### Processus à un phonon

Dans la région des forts champs magnétiques, voisins de 10 T, Heiss et coll. observent un taux de relaxation du trou  $\Gamma_1 = (T_1)^{-1}$  qui varie linéairement en température à partir de 5 K. Cette dépendance en température est le reflet de l'interaction trou-phonon dont le processus engage l'absorption ou l'émission d'un phonon [80, 70, 81]. On peut le comprendre simplement. Pour ce processus, le taux de relaxation entre les deux états mélangés de trou  $|i\rangle$  et  $|f\rangle$  est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_{i \rightarrow f}^{1ph} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{q}} |M_{\vec{q}}|^2 [\delta(\epsilon_f - \epsilon_i - \hbar\omega_{\vec{q}})N_{\vec{q}} + \delta(\epsilon_f - \epsilon_i + \hbar\omega_{\vec{q}})(N_{\vec{q}} + 1)] \quad (5.18)$$

où  $\epsilon_i$  et  $\epsilon_f$  sont, respectivement, les énergies des états initial et final,  $M_{\vec{q}}$  est l'élément de matrice du hamiltonien d'interaction trou-phonon entre les états  $|i\rangle$  et  $|f\rangle$ ,  $\vec{q}$  le vecteur d'onde du phonon,  $\omega_{\vec{q}}$  sa fréquence et  $N_{\vec{q}}$  le facteur d'occupation donné par la statistique de Bose :  $N_{\omega_{\vec{q}}} = 1/[\exp(\hbar\omega_{\vec{q}}/k_B T) - 1]$ . La conservation de l'énergie impose que les phonons participant notablement au couplage aient une énergie  $\hbar\omega_{\vec{q}}$  voisine de  $\Delta E = \epsilon_f - \epsilon_i$ . Ainsi l'évolution de  $\Gamma_{i \rightarrow f}^{1ph}$  en fonction de la température est contrôlée par le facteur d'occupation tel que :  $N_{\vec{q}} \approx N_{\Delta E}$ . En présence du champ magnétique la différence d'énergie entre les états de trous est donnée par  $\Delta E = g_h \mu_B B$ . Pour les températures vérifiant  $k_B T \gg \Delta E$ , on obtient :

$$N_{\Delta E} = 1/[\exp(\Delta E/k_B T) - 1] \simeq \frac{k_B}{\Delta E} T \quad (5.19)$$

Le taux de relaxation  $\Gamma_{i \rightarrow f}^{1ph}$  évolue bien de manière linéaire en fonction de la température, à condition que celle-ci soit suffisamment grande par rapport à la séparation énergétique entre les deux états du trou.

Concernant l'évolution avec le champ magnétique  $B$  longitudinal, les auteurs des références [80, 70, 81] montrent qu'en fonction de la nature du couplage spin-orbite (CSO) envisagé, le taux de relaxation  $\Gamma_{i \rightarrow f}$  vérifie une loi en  $B^n$  :  $B^7$  (CSO entre trous lourds et légers),  $B^5$  (CSO de Dresselhaus),  $B^9$  (CSO de Rashba). Le processus à un phonon devient donc négligeable dans la région des champs faibles. En effet, lorsque la séparation d'énergie entre les deux états de trous  $\Delta E = g_h \mu_B B$  est voisine de 0, la densité des états de phonons pouvant satisfaire la conservation de l'énergie [cf. 5.18] l'est également. La probabilité par unité de temps que le processus se réalise devient donc négligeable.

### Processus à deux phonons

Dans la région des faibles champs magnétiques  $B < 1$  T et pour les températures  $T > 2$  K, les récents travaux théoriques des références [72, 73] prévoient que le processus dominant

de l'interaction trou-phonon est celui au second ordre : le trou dans l'état initial  $|i\rangle$  est promu dans l'état intermédiaire  $|s\rangle$  par l'absorption (émission) d'un phonon  $(\vec{q}, \omega_{\vec{q}})$ , l'état intermédiaire  $|s\rangle$  étant couplé à l'état final  $|f\rangle$  par l'émission (absorption) d'un phonon  $(\vec{k}, \omega_{\vec{k}})$ . Le taux de relaxation de spin de l'état  $|i\rangle$  vers l'état  $|f\rangle$  est donné par :

$$\Gamma_{i \rightarrow f}^{2ph} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{q}, \vec{k}} \left[ \sum_s \left( \frac{M_{\vec{q}}^{is} M_{\vec{k}}^{sf}}{\epsilon_s - \epsilon_i - \hbar\omega_{\vec{q}}} + \frac{M_{\vec{k}}^{is} M_{\vec{q}}^{sf}}{\epsilon_s - \epsilon_i + \hbar\omega_{\vec{k}}} \right) \right]^2 N_{\vec{q}}(N_{\vec{k}} + 1) \delta(\epsilon_f - \epsilon_i - \hbar\omega_{\vec{q}} + \hbar\omega_{\vec{k}}) \quad (5.20)$$

Contrairement au processus à un phonon, même si les états  $|i\rangle$  et  $|f\rangle$  sont dégénérés en énergie, les états virtuels engagés dans le processus au second ordre permettent le couplage entre les deux états du trou. L'évolution du taux de relaxation est cette fois régie par le produit des facteurs d'occupation, ce qui conduit à  $\Gamma_{i \rightarrow f}^{2ph} \sim T^2$  pour  $k_B T \gg \hbar\omega_{\vec{q}, \vec{k}}$ .

Les phonons acoustiques ont une énergie moyenne  $\langle \hbar\omega_{\vec{q}, \vec{k}} \rangle$  voisine de 1 meV, avec  $k_B = 8.2 \cdot 10^{-2}$  meV.K<sup>-1</sup>. L'évolution quadratique du taux  $\Gamma_{i \rightarrow f}^{2ph}$  en fonction de la température est donc attendue pour  $T \gtrsim 10\text{-}20$  K.

L'évolution du taux de relaxation en fonction de la température permet donc de déterminer expérimentalement si la dynamique de spin est contrôlée par le processus à un phonon ou à deux phonons. C'est dans ce contexte que se situe notre étude de la relaxation du trou à champ faible ou nul en fonction de la température.

### 5.5.2 Expérience

Les études en température n'ont pu être menées sur l'échantillon (74K31), dopé à  $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , précédemment utilisé. Sur cet échantillon, le signal de DCP se dégrade très vite avec la température, pour une raison que nous ne comprenons pas.

La figure 5.9 présente l'évolution expérimentale du taux de relaxation  $\Gamma_1$  du trou en fonction de la température. Le taux de relaxation est extrait à l'aide de l'expérience de DCP résolue en fréquence. L'expérience est réalisée avec et sans champ magnétique. La mesure est effectuée sur l'échantillon (71J43), dopé à  $1.2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ .

Avec et sans champ magnétique, on observe (cf. figure 5.9) que le taux de relaxation est quasiment constant pour  $T \lesssim 15\text{K}$  et qu'il augmente notablement au-delà. Dans la gamme de températures inférieures à 15 K, ce sont les mécanismes discutés précédemment qui s'affirment :

- Pour  $B = 0$  (courbe rouge), interviennent l'interaction hyperfine aux temps longs ( $\Gamma_N^h$ ) et le troisième mécanisme lié, éventuellement, à l'environnement électrostatique ( $\Gamma^{env}$ ) :

$$\Gamma_1(B = 0, T \lesssim 15 \text{ K}) = \Gamma_N^h + \Gamma^{env} \quad (5.21)$$

- Pour l'expérience à  $B = 20$  mT, l'interaction hyperfine est écrantée et seul le troisième

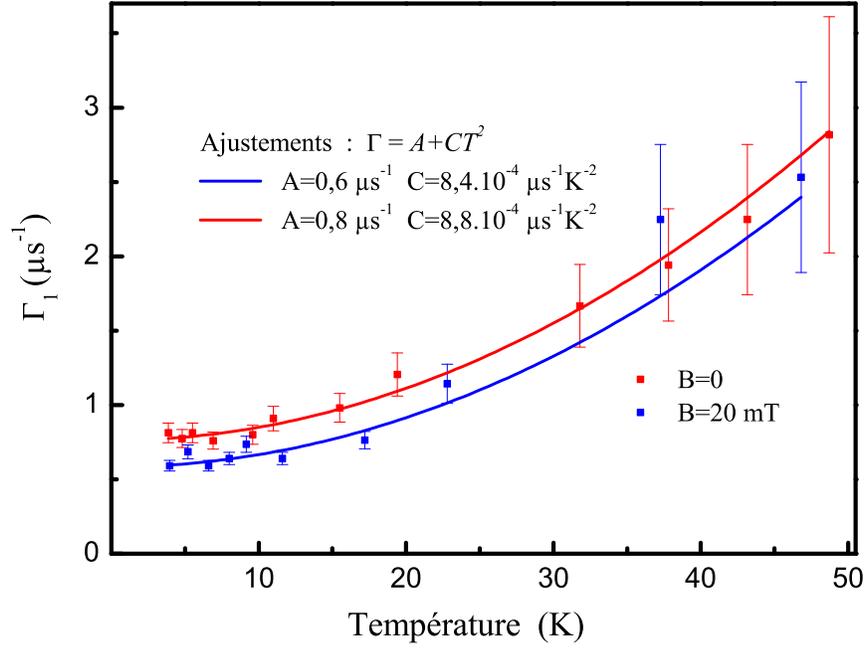


FIGURE 5.9: Taux de relaxation  $\Gamma_1$  du trou en fonction de la température, à champ nul (courbe rouge) et avec un champ de 20 mT (courbe bleue). L'expérience est réalisée sur l'échantillon dopé à  $1.2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  (71J43).

mécanisme est actif :

$$\Gamma_1(B = 20 \text{ mT}, T \lesssim 15 \text{ K}) = \Gamma^{env} \quad (5.22)$$

En revanche, pour  $T \gtrsim 15 \text{ K}$ , la forte dépendance en température indique la manifestation de l'interaction spin-phonon. L'ajustement de cette dépendance conduit à une loi quadratique en température :

$$\Gamma_1 = A + CT^2 \quad (5.23)$$

Comme nous l'avons précédemment discuté (cf. section 5.5.1), une évolution quadratique en température, à champ nul ou faible, est une signature du processus à deux phonons [72, 73]. L'ajustement conduit à un coefficient  $C$  d'environ  $8.5 \cdot 10^{-4} \mu\text{s}^{-1}\text{K}^{-2}$ , et ce pour  $B = 0$  et  $B = 20 \text{ mT}$ . Dans la référence [72], l'expression littérale de ce coefficient est la suivante :

$$C = \frac{m_h^6 \beta^2 \Xi_0^4 k_B^2}{\hbar^6 c_l^3 \lambda_d \rho_c} \quad (5.24)$$

avec  $\Xi_0$  le potentiel de déformation,  $\beta$  la constante de couplage spin-orbite  $m_h$  la masse du trou lourd,  $c_l$  la vitesse du son,  $\lambda_d$  le diamètre de la boîte quantique,  $\rho_c$  la masse volumique du matériau. La dépendance quadratique en température est vérifiée pour  $T > T_c = \frac{\hbar c_l}{k_B \lambda_d}$ . La valeur des paramètres utilisés par les auteurs, pour les boîtes InAs, sont :  $\Xi_0 = 1.9 \text{ eV}$ ,  $\beta = 4.8 \cdot 10^{18} \text{ m}^3/\text{eV}^2 \text{ s}^{-3}$ ,  $m_h = 0.25 m_0$ ,  $c_l = 3.83 \cdot 10^3 \text{ ms}^{-1}$ ,  $\lambda_d = 3 \text{ nm}$  et  $\rho_c = 5.68 \cdot 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ . On aboutit finalement à  $C = 7.85 \cdot 10^{-4} \mu\text{s}^{-1}\text{K}^{-2}$  et  $T_c = 10 \text{ K}$ . L'accord avec nos

résultats expérimentaux est très bon. Cependant, cette estimation est à prendre avec recul. En effet, même si les valeurs des paramètres utilisés sont standard pour des boîtes d'InAs, il n'est pas possible de vérifier leur exactitude sur notre échantillon. Retenons seulement que l'ordre de grandeur est en accord avec notre mesure expérimentale.

En conclusion, la valeur expérimentale du taux de relaxation  $\Gamma_1$ , ainsi que son évolution avec la température, indiquent que la relaxation de spin du trou, à bas champ et pour  $T \gtrsim 15$  K, est contrôlée par le mécanisme à deux phonons ( $\Gamma^{2ph}$ ). Ce résultat constitue la première mise en évidence expérimentale de ce mécanisme dans les boîtes quantiques.

## 5.6 Conclusion

À l'aide d'une technique expérimentale basée sur la réponse fréquentielle du signal de dichroïsme circulaire, nous avons pu étudier la dynamique de spin sur une échelle de temps comprise entre 100 ns et 1 ms. Nous avons pu mettre en évidence que l'initialisation de la polarisation de spin du trou peut être atteinte après environ huit impulsions pompe. Nous avons montré, à l'aide d'une modélisation, que le temps d'initialisation  $\tau_i$  de spin du trou est quasi indépendant du coefficient de mélange entre les états de trous lourds et légers.

Le second volet de notre étude a porté sur la mesure du temps caractéristique de relaxation  $T_1$  de spin du trou, sur les dynamiques temporelles longues. Nous avons mis en évidence, à champ magnétique nul, que l'interaction hyperfine est encore le mécanisme dominant de la relaxation de spin du trou sur une échelle de temps bien supérieure à  $T_{\Delta}^h \simeq 10$  ns. Cette contribution aux temps longs est induite par le caractère inhomogène de la fonction d'onde du trou et se caractérise par un temps  $T_N^h \simeq 1 \mu\text{s}$ . Les résultats expérimentaux nous indiquent que cette contribution aux temps longs peut être écrantée par un champ magnétique d'environ 5 mT. Cette valeur est identique à celle qui permet d'écranter le mécanisme hyperfin aux temps courts, mis en évidence au chapitre 4. Cependant, un autre mécanisme de relaxation, a priori peu dépendant du champ magnétique jusqu'à 2 T, est effectif. Nous n'avons pu obtenir de certitude concernant la nature de ce mécanisme. Néanmoins, un processus lié à la proximité d'accepteurs, au voisinage des boîtes quantiques, apparaît comme une interprétation cohérente avec nos mesures expérimentales.

La dernière étude que nous avons menée sur l'évolution du temps de relaxation caractéristique  $T_1$  en fonction de la température, s'est révélée fort concluante : une nette augmentation, quadratique en température, du taux de relaxation  $\Gamma_1$  a été observée à partir de 15 K et à faible champ magnétique ( $\leq 20$  mT). La dépendance quadratique du taux de relaxation  $\Gamma_1$  avec la température est la signature que la relaxation du trou est contrôlée par l'interaction trou-phonon au deuxième ordre, dans la gamme de température  $T \gtrsim 15$  K.

# Chapitre 6

## Polarisation dynamique nucléaire induite par le trou

### Sommaire

---

6.1	Introduction . . . . .	<b>122</b>
6.2	Mise en évidence expérimentale des effets nucléaires . . . . .	<b>123</b>
6.2.1	Dédoublment Zeeman de la luminescence sans champ magnétique appliqué . . . . .	124
6.2.2	Enjeux de l'étude des effets nucléaires en configuration pompe-sonde . . . . .	126
6.2.3	Effets des champs effectifs sur la polarisation de spin du porteur . . . . .	126
6.3	Déplacement de la polarisation sous excitation résonnante . . . . .	<b>130</b>
6.3.1	Expériences en configuration Faraday, modulation de la polarisation d'excitation . . . . .	130
6.3.2	Expériences en configuration Faraday sous excitation polarisée . . . . .	132
6.3.3	Interprétation : champ Overhauser ou champ Knight ? . . . . .	133
6.3.4	Conclusion partielle . . . . .	135
6.4	Origine de la polarisation des noyaux . . . . .	<b>136</b>
6.4.1	Déplacement Overhauser sous excitation non résonnante . . . . .	137
6.4.2	Sens de la polarisation nucléaire sous excitation résonnante . . . . .	139
6.4.3	Efficacité du processus de polarisation dynamique, excitation continue versus pulsée . . . . .	140
6.4.4	Limites de l'expérience . . . . .	141
6.5	Conclusion . . . . .	<b>142</b>

---

Nous avons vu dans le chapitre 4 que l'interaction hyperfine contrôle, en premier lieu, la dynamique de spin des porteurs photocréés et résidents. Le couplage d'un porteur avec les noyaux est encore une fois au coeur de ce chapitre, mais c'est son caractère réciproque qui en est l'enjeu. En effet, lorsque le porteur de spin électronique relaxe par interaction hyperfine, il cède son moment cinétique de spin aux noyaux. Si l'on répète ce processus suffisamment vite devant le temps de relaxation des spins nucléaires, cela entraîne une polarisation des noyaux suivant la direction moyenne du spin électronique.

Nous présentons, ici, des expériences de polarisation dynamique nucléaire réalisées sur un ensemble de boîtes quantiques dopées en trous. La problématique centrale, qui articule ces expériences, porte sur l'origine des effets nucléaires observés. Si le couplage transverse trou-noyaux entraîne une relaxation de spin du trou en  $\sim 10$  ns, est-il suffisamment efficace pour polariser à son tour les noyaux ?

La comparaison des effets nucléaires observés dans les cas d'une excitation optique résonnante et hors résonnante nous permet de répondre à cette question. Bien que son interaction hyperfine avec les noyaux soit dix fois plus faible que celle de l'électron, nous montrons que le spin du trou, dans une configuration particulière d'excitation, est non seulement une sonde de la polarisation nucléaire mais peut en être également à l'origine.

## 6.1 Introduction

Dans les années 1970-1980, la polarisation dynamique des spins nucléaires dans les semi-conducteurs a fait l'objet d'études poussées aussi bien sur le plan théorique que sur le plan expérimental, avec notamment les travaux de D. Paget et G. Lampel [56]. Par polarisation dynamique nucléaire (PDN), on entend le processus de construction d'une orientation du spin des noyaux suivant l'axe de propagation de la lumière. D. Paget et G. Lampel ont clairement mis en évidence des effets nucléaires associés aux électrons localisés sur des donneurs, en faible concentration, dans des semi-conducteurs 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 qu'existe un effet de polarisation nucléaire, l'électron doit interagir avec un nombre limité de noyaux. Pour les impuretés hydrogénoïdes dans un semi-conducteur massif, étudiées par D. Paget et G. Lampel, le volume d'interaction électron-noyaux est défini par le rayon de Bohr  $a_B \approx 10$  nm, englobant environ  $10^6$  noyaux. En comparaison, l'électron confiné dans une boîte quantique auto-assemblée d'InAs/GaAs interagit avec un nombre de spins nucléaires d'un ordre de grandeur plus faible. (Ajoutons que ce nombre reste encore trop grand pour adresser chaque spin nucléaire de manière individuelle).

Un autre paramètre essentiel est la polarisation moyenne des électrons photo-créés ; 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 entre un système massif et une boîte quantique. Dans les semi-conducteurs massifs, les mécanismes de relaxation de spin sont extrêmement efficaces, la

polarisation de spin dans les conditions de pompage optique orienté est  $P_c \approx 1\%$ , alors que pour les boîtes quantiques d'InAs, les mécanismes de relaxation du spin électronique sont gelés et l'on peut obtenir assez facilement  $P_c \geq 50\%$ . En conséquence, la polarisation nucléaire atteinte dans les semiconducteurs massifs reste un phénomène d'intensité très faible, et les boîtes quantiques semblent constituer 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 [105, 106, 107]. Une polarisation des noyaux élevée permettrait également de diminuer les fluctuations nucléaires et ainsi protégerait l'observable de spin électronique des mécanismes de relaxation et de décohérences liés à l'interaction hyperfine [108].

Expérimentalement, les effets nucléaires ont été pour la première fois mis en évidence, sur les boîtes quantiques, par Gammon en 1996 [109]. L'expérience, menée sur une boîte unique de fluctuations d'interface GaAs/GaAlAs, a conduit à une polarisation nucléaire élevée de 60%. Des expériences plus récentes sur des boîtes uniques d'InAs/GaAs chargées électriquement ont révélé un taux de polarisation des noyaux allant de 5 à 30 % en fonction du champ magnétique appliqué. De plus, le comportement à hystérésis de la polarisation nucléaire en fonction du champ magnétique appliqué, ou de la polarisation optique d'excitation s'est révélé être particulièrement intéressant [110, 16, 17, 111, 112].

### vocabulaire et notations du chapitre

Par souci de clarté dans le texte, on définit ici le vocabulaire et les notations, utilisés par la suite.

“spin du porteur ” : désigne aussi bien le spin du trion que le spin résident.

$\vec{B}_z$  : champ magnétique extérieur appliqué suivant la direction d'excitation optique

$\vec{B}_n^{h(e)}$  : champ Overhauser perçu par le trou (l'électron)

$\vec{B}_k^{h(e)}$  : champ Knight exercé par le trou (l'électron)

$\vec{B}_{tot}^{h(e)} = \vec{B}_n^{h(e)} + \vec{B}_z$  : champ total perçu par le trou (l'électron)

$\vec{B}_{tot}^{noy} = \vec{B}_k^h + \vec{B}_k^e + \vec{B}_z$  : champ total perçu par les noyaux

Lorsque les notations désignent aussi bien le spin du trion que le spin du trou résident, les grandeurs sont notées sans exposant :  $\vec{B}_n, \vec{B}_k, \vec{B}_z, \vec{B}_{tot}$ .

## 6.2 Mise en évidence expérimentale des effets nucléaires

Nous décrivons, en premier lieu, une expérience de photo-luminescence réalisée par C. W. Lai et coll. sur une boîte unique chargée électriquement [17]. Cette expérience nous permet d'illustrer la mise en évidence des effets nucléaires en photo-luminescence. Nous discutons ensuite les enjeux et les possibilités d'observer de tels effets sur des expériences de type pompe-sonde.

### 6.2.1 Dédoublément Zeeman de la luminescence sans champ magnétique appliqué

Les expériences de photo-luminescence, sur les boîtes quantiques dopées, donnent accès à la mesure de deux quantités : (i) l'énergie de luminescence du photon émis ; (ii) la polarisation moyenne  $P$  de spin du trion photocréé qui est donnée par la différence des intensités intégrées des émissions  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  sur la somme :

$$P = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} \quad (6.1)$$

L'expérience de la référence [17] a été réalisée sur une boîte unique d'InAs/GaAs contactée électriquement, sous excitation continue.

La figure 6.1 montre les spectres de photo-luminescence des trions  $X^-$  et  $X^+$ , obtenus sous excitation linéaire et circulaire. Sous excitation linéaire sans champ magnétique appliqué, le spectre ne présente pas de structure fine, ce qui confirme d'une part que l'état excité de la boîte est bien un trion<sup>1</sup>, et d'autre part qu'aucun effet nucléaire n'est présent.

Sous excitation circulaire, sans champ magnétique appliqué, on observe une levée de dégénérescence, pour les trions  $X^-$  et  $X^+$ , entre les énergies des photons co-polarisés et contra-polarisés<sup>2</sup>. Le spectre a la même structure que celui qu'on obtiendrait en appliquant un champ magnétique suivant la direction du laser. Ce dédoublément Zeeman est associé à la polarisation nucléaire, qui, à travers le terme longitudinal de l'interaction hyperfine, agit sur les niveaux de spin comme un champ magnétique (champ Overhauser). Le sens de la levée de dégénérescence est réversible avec la polarisation d'excitation et l'état de charge de la boîte.

Par exemple, pour un état de charge positif ( $X^+$ ), sous excitation polarisée  $\sigma^+$  (cf. figure 6.1 (b)), la polarisation de spin photocréée est majoritairement celle de l'électron dans l'état trion  $|T \downarrow\rangle$ . Cet électron, par couplage hyperfin, cède en moyenne un moment cinétique négatif aux noyaux. Le spin nucléaire total  $\langle I_z \rangle$  est donc également négatif :  $\langle I_z \rangle < 0$ . La luminescence co-polarisée  $\sigma^+$ , correspond à celle de l'état  $|T \downarrow\rangle$ . Le déplacement en énergie  $E_{\sigma^+}$  correspondant est donné par :

$$E_{\sigma^+} \propto A^e \langle I_z \rangle \left(-\frac{1}{2}\right) > 0 \quad (6.2)$$

De même, le déplacement de la luminescence contra-polarisée  $\sigma^-$  est proportionnel à :

$$E_{\sigma^-} \propto A^e \langle I_z \rangle \left(+\frac{1}{2}\right) < 0 \quad (6.3)$$

Finalement, on en déduit :  $E_{\sigma^-} < E_{\sigma^+}$  [cf. figure 6.1 (b)].

Pour un état de charge  $X^+$ , le sens du déplacement de l'énergie de luminescence est donc

1. On suppose dans cette expérience que lorsque la boîte n'est pas chargée, le splitting X-Y est résolu. Lorsque la boîte se charge le splitting disparaît. Cela signifie que les états propres excités ne sont plus des excitons (polarisés linéairement) mais des trions (polarisés circulairement). En effet dans l'état trion, qui est composé de trois particules, les interactions d'échange électron-trou sont compensées.

2. Le taux de polarisation photocréé est voisin de 60% (figure non montrée).

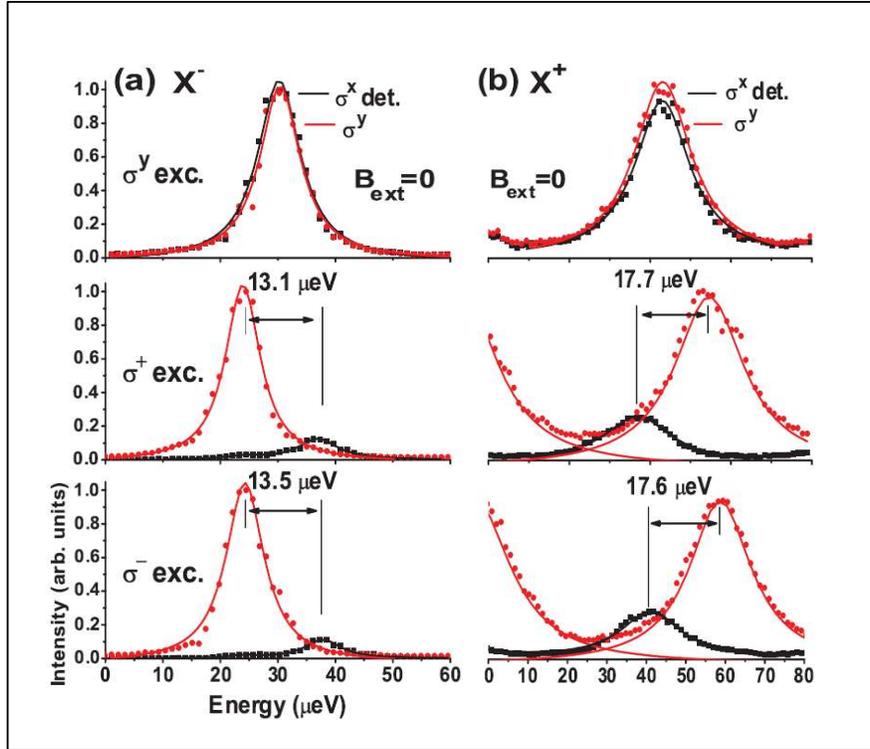


FIGURE 6.1: Spectres de photo-luminescence d'une boîte quantique sous état de charge  $X^-$  (a) et  $X^+$  (b), pour trois polarisations d'excitation différentes ( $\sigma^y$ ,  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ). Les luminescences co-polarisée et contra-polarisée par rapport à l'excitation sont respectivement en rouge et en noir. Spectres issus de la référence [17].

contrôlé par la polarisation du spin électronique photo-créé. De même, pour un état de charge  $X^-$ , le sens du déplacement de l'énergie de luminescence est contrôlé par le spin électronique résident, polarisé après émission d'un photon.

La mesure de la séparation en énergie renseigne sur le taux de polarisation moyen des noyaux, qui est voisin de 10 % dans cette expérience. Des taux de polarisation similaires ont également été obtenus par les équipes de T. Amand au LPCNO et O. Krebs au LPN[16] en appliquant un champ magnétique de 200 mT.

L'expérience présentée ici est particulièrement intéressante car les effets nucléaires sont obtenus sans champ magnétique appliqué. Ce point est discuté plus en détail dans les parties suivantes.

En conclusion, la détection du déplacement de l'énergie de la luminescence est une méthode adaptée pour l'étude des effets nucléaires sur une boîte quantique unique. Cependant, sur un ensemble de boîtes quantiques, la dispersion inhomogène de l'énergie de luminescence des boîtes est a priori bien supérieure au déplacement Overhauser (dédoublé Zeeman) de chaque boîte ; cela rend impossible l'utilisation de cette méthode pour étudier les effets

nucléaires sur un ensemble de boîtes.

Sur un ensemble, seule la mesure de la polarisation du spin photocréé permet d'obtenir des informations sur la polarisation des noyaux [113, 17].

### 6.2.2 Enjeux de l'étude des effets nucléaires en configuration pompe-sonde

Des expériences récentes ont permis de démontrer que le trou peut ressentir la polarisation nucléaire à travers le terme longitudinal du couplage trou-noyaux [114, 66]. Dans le chapitre 4 nous avons vu que la partie transverse du couplage trou-noyaux entraîne une relaxation de spin du trou. Cette relaxation, qui traduit un transfert de moment cinétique du trou vers les noyaux, peut-elle conduire à son tour à une polarisation nucléaire ?

Les expériences pompe-sonde que nous présentons ici tentent de répondre à cette problématique.

Le délai temporel, accordable, entre la pompe et la sonde permet d'étudier de manière indépendante la polarisation de spin résidente dans l'échantillon, et de se concentrer ainsi sur les effets nucléaires ressentis par celle-ci.

Un autre avantage des études pompe-sonde est la possibilité d'accorder indépendamment les énergies de l'impulsion pompe et de l'impulsion sonde. On peut, en effet, exciter la transition fondamentale de manière résonnante, ou accorder la pompe sur un niveau d'énergie supérieur (cf. chap. 4). L'étude, et la comparaison, des effets nucléaires dans les deux configurations d'excitation sont dans notre cas essentielles pour déterminer les processus qui en sont à l'origine. Ce point est particulièrement important car, à ce jour, la polarisation dynamique des noyaux dans les semiconducteurs a toujours été associée au spin de l'électron, qu'il soit photocréé ou résident [17, 115, 16, 110, 113, 109].

### 6.2.3 Effets des champs effectifs sur la polarisation de spin du porteur

Comme nous l'avons mentionné, sur un ensemble de boîtes, l'étude des effets nucléaires est basée sur l'observation de la polarisation de spin du porteur. Nous discutons ici des singularités attendues sur cette polarisation de spin en fonction du champ magnétique appliqué.

#### Relation entre la polarisation de spin et le champ perçu

Le mécanisme de relaxation de spin du porteur (trou mélangé ou électron) le plus efficace est le couplage avec les noyaux (cf. chap. 4). Lorsque l'on applique un champ magnétique suivant la direction de polarisation du porteur, les niveaux d'énergie des deux états de spin du porteur se séparent, et le changement d'énergie entraîné par le spin flip du porteur n'est pas compensé par celui du noyaux ( $\frac{g_e \hbar \mu_b}{\mu_I} \sim 500$ ). Le processus flip-flop entre le porteur et un noyau, ne conservant pas l'énergie, devient peu probable. Le spin initialement orienté se retrouve donc protégé du couplage hyperfin avec les noyaux. La polarisation de spin augmente avec le champ magnétique et le minimum est atteint lorsque celui-ci est nul. Cette

relation, entre le niveau de polarisation de spin et le champ magnétique, doit être considérée avec le champ magnétique total perçu par le spin du porteur, qu'il soit effectif ou appliqué.

### Effet du champ Overhauser

L'orientation moyenne des noyaux induit en retour un champ magnétique effectif  $\vec{B}_n$  agissant sur le spin du porteur considéré. Le champ total ressenti par le spin du porteur est donc  $\vec{B}_{tot} = \vec{B}_z + \vec{B}_n$ , où  $\vec{B}_z$  est le champ appliqué et  $\vec{B}_n$  est le champ Overhauser perçu par le porteur. Les champs Overhauser  $\vec{B}_n^e$  et  $\vec{B}_n^h$ , perçus respectivement par l'électron et le trou, sont les valeurs moyennes des observables du champ nucléaire effectif. A l'aide des hamiltoniens hyperfins du trou ( $H^h$ ) et de l'électron ( $H^e$ ), on exprime les champs Overhauser de la manière suivante<sup>3</sup> :

$$H^h = \sum_j C_j^h \left[ \frac{2|\beta|}{\sqrt{3}} (S_x^h I_x^j + S_y^h I_y^j) + S_z^h I_z^j \right] = -g_h \mu_B \hat{S}^h \cdot \hat{B}_n^h \quad (6.4)$$

$$H^e = \sum_j A_j^e [S_x^e I_x^j + S_y^e I_y^j + S_z^e I_z^j] = g_e \mu_B \hat{S}^e \cdot \hat{B}_n^e \quad (6.5)$$

$$\vec{B}_n^e = \langle \hat{B}_n^e \rangle = \frac{1}{g_e \mu_B} \sum_j A_j^e \langle I_z^j \rangle \vec{e}_z \quad \vec{B}_n^h = \langle \hat{B}_n^h \rangle = \frac{-1}{g_h \mu_B} \sum_j C_j^h \langle I_z^j \rangle \vec{e}_z \quad (6.6)$$

où  $A_j^e(C_j^h) = A_\varepsilon^e(C_\varepsilon^h) |\Phi_h(\vec{r}_j)|^2 \nu_0$  et  $A_\varepsilon^e(C_\varepsilon^h)$  est la constante hyperfine de couplage de l'électron (du trou) avec l'espèce nucléaire  $\varepsilon$  considérée (In, As, Ga).

La polarisation doit donc marquer une dissymétrie selon que  $\vec{B}_n$  s'oppose ou s'additionne à  $\vec{B}_z$ , et atteindre un minimum lorsque  $\vec{B}_z = -\vec{B}_n$  [113, 116]. La figure 6.2, issue de la référence [113], illustre ce propos. L'expérience est réalisée sur un ensemble de boîtes quantiques dopées n. On constate bien une dissymétrie de la polarisation résidente d'électrons en fonction du champ magnétique. Le minimum local de la polarisation de spin électronique, pour un champ magnétique voisin de 30 mT, correspond à la situation où le champ Overhauser écrante le champ appliqué :  $\vec{B}_z = -\vec{B}_n^e$ . On observe également sur cette courbe, un déplacement d'environ 1 mT du minimum absolu de la polarisation électronique. Les auteurs interprètent ce déplacement par un effet du champ Knight perçu par les spins nucléaires. Nous discutons de cet effet dans le paragraphe suivant.

### Champ Knight

Le dual du champ Overhauser  $\vec{B}_n$  est le champ Knight  $\vec{B}_k$ , ressenti par les noyaux. En effet, si la polarisation nucléaire induit un champ effectif sur le spin du porteur, la polarisation de spin du porteur entraîne, à son tour, un champ effectif agissant sur les noyaux. Les champs  $\vec{B}_k^e$  et  $\vec{B}_k^h$ , induits respectivement par l'électron et le trou sur un noyau  $j$ , s'expriment de la manière suivante :

$$H_j^h = C_j^h \left[ \frac{2|\beta|}{\sqrt{3}} (S_x^h I_x^j + S_y^h I_y^j) + S_z^h I_z^j \right] = -\mu_I^j \hat{I}^j \cdot \hat{B}_k^h \quad (6.7)$$

3. Nous adoptons la convention suivante pour l'hamiltonien d'interaction avec un champ magnétique :  $H = g_e \mu_B \vec{S}^e \cdot \vec{B}$  pour un électron et  $H = -g_h \mu_B \vec{S}^h \cdot \vec{B}$  pour un trou, avec  $\mu_B$  positif.

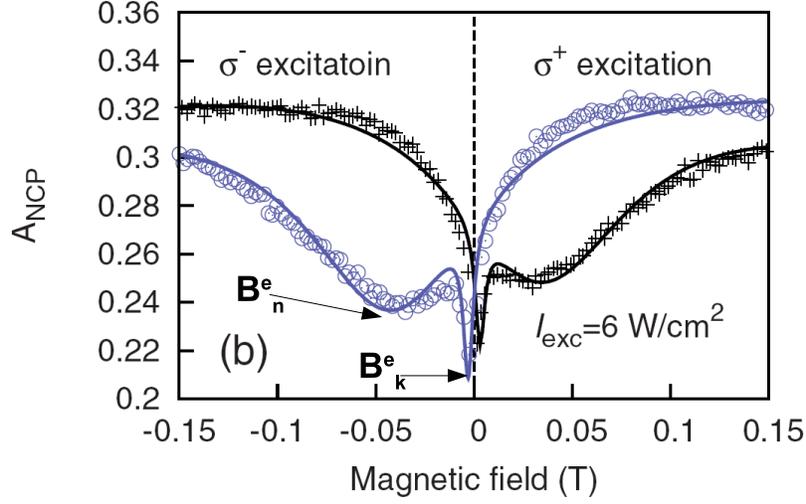


FIGURE 6.2: Polarisation de spin des électrons résidents ( $A_{NCP} \approx 2S_z^e$ ), obtenue par photoluminescence, en fonction du champ magnétique appliqué sur un échantillon de boîtes quantiques dopées  $n$ . Les effets des champs Knight et Overhauser sont signifiés sur le graphique. Figure issue de la référence [113].

$$H_j^e = A_j^e [S_x^e I_x^j + S_y^e I_y^j + S_z^e I_z^j] = -\mu_I^j \hat{I}^j \cdot \hat{B}_k^e \quad (6.8)$$

$$\vec{B}_k^h(\vec{r}_j) = -C_j^h \frac{\langle S_z^h \rangle \vec{e}_z}{\mu_I^j} \quad \vec{B}_k^e(\vec{r}_j) = -A_j^e \frac{\langle S_z^e \rangle \vec{e}_z}{\mu_I^j} \quad (6.9)$$

où  $\mu_I^j$  est le magnéton nucléaire du noyau  $j$  considéré, et  $H_j^{h,e}$  le hamiltonien d'interaction hyperfin entre le porteur et le noyau  $j$ . Précisons qu'il y a une différence de nature entre les champs Knight et Overhauser : le spin du porteur interagit avec un nombre  $N$  de noyaux, alors que chaque noyau se couple avec un seul porteur de spin. La figure 6.3 schématise la rétroaction des champs Knight et Overhauser sur les spins des noyaux et le spin du porteur, respectivement.

Comme cela a été montré dans les références [93, 17, 113] et illustré sur la figure (6.2), le champ Knight peut lui aussi, de manière indirecte, expliquer un déplacement de la polarisation du spin photocréé. Ceci s'explique à condition de prendre en compte le mécanisme de relaxation de la polarisation nucléaire.

### Conséquence indirecte du champ Knight sur la polarisation

A champ nul, le couplage dipolaire entre les noyaux entraîne une relaxation de la polarisation nucléaire en un temps caractéristique de  $\sim 0.1 - 1$  ms [54, 7, 93]. Cette interaction se traduit, elle aussi, en terme de champ effectif ; le champ local dipolaire est estimé sur des boîtes d'InAs, dans la référence [93], à  $B_{local} \simeq 0.1 - 0.2$  mT.

De manière similaire au spin électronique, la séparation en énergie des sous-niveaux Zee-

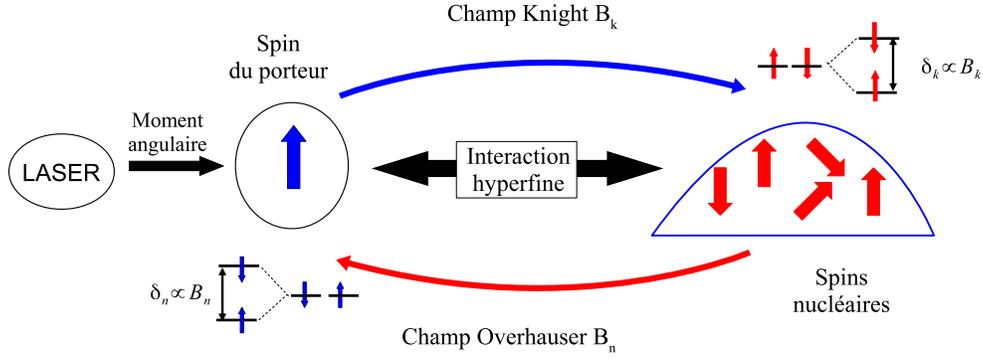


FIGURE 6.3: Interconnexion entre les polarisations de spin du porteur et nucléaire, via l'interaction hyperfine.

man nucléaires, induite par le champ total perçu par les noyaux  $\vec{B}_{tot}^{noy} = \vec{B}_z + \vec{B}_k$ , contrôle l'efficacité de la relaxation de spin des noyaux :

- (i) Si  $B_{tot}^{noy} \leq B_{local}$ , le couplage dipolaire peut être suffisamment efficace pour empêcher la construction de la polarisation nucléaire.
- (ii) Inversement, si  $B_{tot}^{noy} \geq B_{local}$ , le champ dipolaire  $B_{local}$  est écranté, les spins nucléaires ne relaxent plus par l'interaction dipolaire et la polarisation dynamique des noyaux (PDN) peut s'établir. Sans champ magnétique appliqué, cette condition peut être également remplie. En effet, le champ Knight perçu par les noyaux peut être suffisant pour écranté le champ dipolaire  $B_{local}$  :  $B_{tot}^{noy} \simeq B_k > B_{local}$  [17].

Cette dernière hypothèse est retenue par Lai et coll. pour expliquer la PDN qu'ils observent sans champ appliqué (voir figure 6.1).

### Déplacement du minimum en fonction du champ extérieur

Poursuivons la discussion sur le minimum de polarisation avec ce nouvel élément. On rappelle que la polarisation du porteur croît avec l'amplitude du champ total  $\vec{B}_{tot} = \vec{B}_z + \vec{B}_n$ , et qu'elle atteint donc un minimum lorsque  $\vec{B}_{tot} = 0$ . On suppose que le champ Knight est d'amplitude suffisante pour écranté le champ local :  $|B_k| > |B_{local}|$ .

1.  $B_z = -B_k$

La situation où le champ appliqué compense le champ Knight entraîne :  $B_{tot}^{noy} = B_z + B_k = 0$ . Le champ local dipôle-dipôle  $B_{local}$  n'est pas écranté, le couplage dipolaire est de nouveau efficace, la polarisation des spins nucléaires relaxe, et le champ Overhauser  $B_{n,1}$  chute.

Faisons l'hypothèse que la polarisation nucléaire disparaisse complètement. Avec  $B_{n,1} = 0$ , le champ total agissant sur le spin du porteur est alors égal en amplitude au champ Knight :  $B_{tot,1} = B_{n,1} + B_z = B_z = -B_k$ .

2.  $B_z \neq -B_k$

Dans cette situation, le champ Knight ne compense plus le champ appliqué, et le champ total perçu par les noyaux est :  $B_{tot}^{noy} = B_z + B_k$ . Avec  $|B_z + B_k| > |B_{local}|$ , le champ local est écranté, et la polarisation nucléaire  $B_{n,2}$  peut à nouveau s'établir. Du point de vue du porteur de spin le champ total effectif devient :  $B_{tot,2} = B_{n,2} + B_z$ . Si on fait l'hypothèse raisonnable que le champ Overhauser est bien supérieur au champ Knight :  $|B_{n,2}| > |B_k|$ , dans la région des champs appliqués voisins de  $B_k$  on obtient :  $|B_{tot,2}| \simeq |B_{n,2}| > |B_k|$ .

Finalement, le champ total perçu par l'électron dans la situation 1) est inférieur à celui dans la situation 2) :  $|B_{tot,1}| < |B_{tot,2}|$ . En conséquence, la polarisation de spin du porteur est un minimum lorsque  $B_z = -B_k$ .

En conclusion, lorsque le champ extérieur compense le champ Knight ou le champ Overhauser, la polarisation de spin du porteur marque localement un minimum. C'est le point de départ de l'interprétation des résultats expérimentaux, que nous présentons dans la partie suivante.

### 6.3 Déplacement de la polarisation sous excitation résonnante

Dans cette partie, afin de mettre en relief des effets nucléaires sur la polarisation de spin du trou, nous présentons des expériences pompe-sonde en fonction du champ magnétique, réalisées avec différentes modulations du faisceau pompe (voir figure 6.4). Dans un premier temps nous discutons des résultats obtenus sous excitation résonnante sur l'état  $X^+$ . Nous faisons ensuite une comparaison avec le cas d'une excitation non résonnante.

#### 6.3.1 Expériences en configuration Faraday, modulation de la polarisation d'excitation

La figure 6.5 (a) présente le résultat d'une expérience de dichroïsme circulaire photo-induit (DCP), en configuration Faraday sur notre échantillon de boîtes quantiques dopées p à  $2.10^{11} \text{ cm}^{-2}$  (71K31). Pompe et sonde sont résonnantes sur la transition fondamentale, à 1,35 eV. Le faisceau pompe est alterné en polarisation par un modulateur élasto-optique (MEO), dont l'effet est rappelé sur la figure 6.4 (a). Le délai temporel entre la pompe et la sonde est fixé à  $\Delta t \approx 13 \text{ ns}$ . On explore ainsi la polarisation de spin du trou en fonction du champ magnétique appliqué. Des expériences similaires ont été présentées au chapitre 4, mais il s'agit ici d'explorer l'évolution du signal dans la région des faibles champs magnétiques ( $\leq 3\text{mT}$ ). En effet, en raison de la constante hyperfine du trou, dix fois plus faible que celle de l'électron, les singularités de la polarisation de spin (cf. section 6.2.3) sont attendues pour des faibles valeurs de champ magnétique.

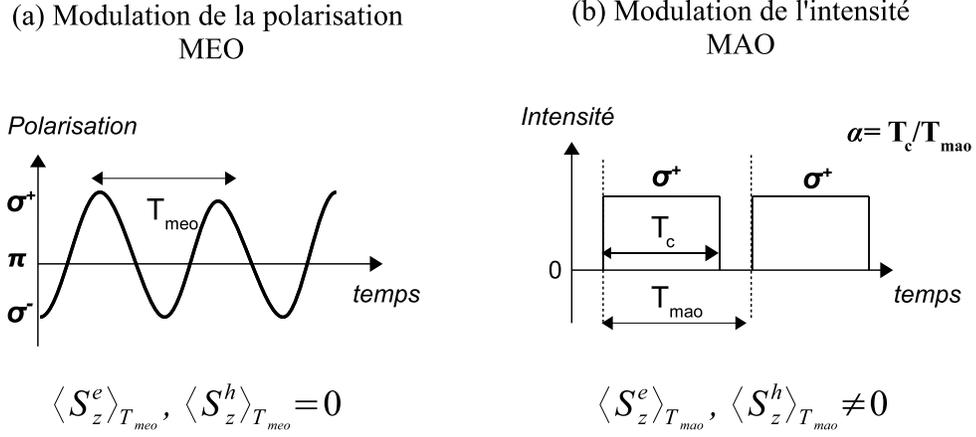


FIGURE 6.4: (a) Principe de la modulation périodique ( $T_{mpe}$ ) de la polarisation du faisceau pompe obtenue, avec un modulateur élasto-optique (MEO) (b) Principe de la modulation périodique ( $T_{mao}$ ) de l'intensité du faisceau pompe, obtenue avec un modulateur acousto-optique (MAO);  $\alpha$  représente le rapport cyclique défini par le rapport  $\frac{T_c}{T_{mao}}$ ;  $\langle S_z^e \rangle$  et  $\langle S_z^h \rangle$  sont respectivement les valeurs moyennes des spins photocréés et résidents à l'échelle de la période de modulation.

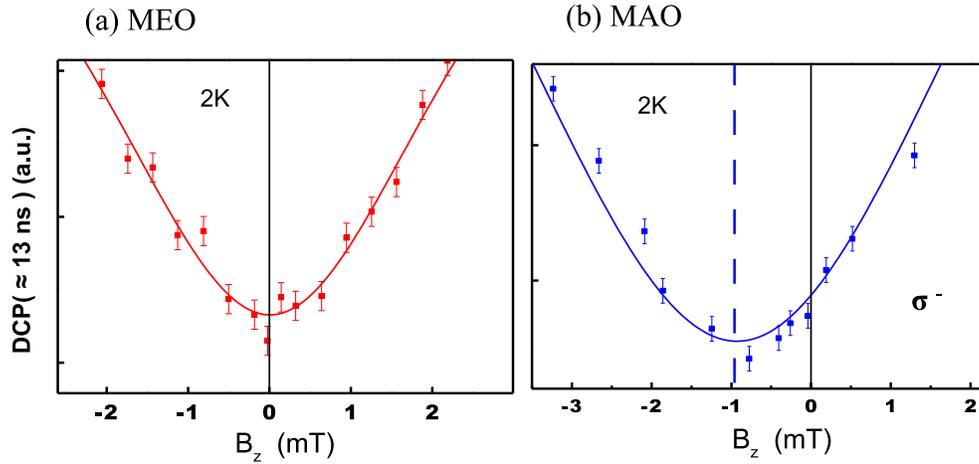


FIGURE 6.5: Signaux de DCP pour un délai pompe-sonde  $\approx 13$  ns, en fonction du champ magnétique appliqué. (a) Modulation de la polarisation circulaire du faisceau pompe alternée à  $F_{meo} = 42$  kHz. (b) Modulation d'intensité du faisceau pompe à une fréquence  $F_{mao} = 100$  kHz et avec un rapport cyclique  $\alpha = 95\%$ , faisceau pompe polarisée  $\sigma^-$ .

On ne constate sur la figure 6.5(a) aucune singularité de la polarisation en fonction du champ magnétique. Le signal est symétrique en fonction du champ appliqué, et le minimum de polarisation de spin du trou est atteint pour une valeur nulle de celui-ci. Il n'y a donc pas de manifestations nucléaires notables dans cette configuration de modulation du faisceau pompe. En effet, la polarisation circulaire du faisceau pompe, et donc l'orientation des électrons et des trous polarisés, sont alternées avec une période d'une vingtaine de  $\mu\text{s}$  ( $F_{meo} = 42 \text{ kHz}$ ). Si on se base sur les travaux des références [117, 113, 110], l'orientation des noyaux par un électron résident ou photocréé se construit dans un temps d'environ 1 ms, au minimum. A l'échelle de ce temps de construction, le moment cinétique de spin cédé aux noyaux, par les porteurs de spin résident ou photo-créé, est en moyenne nul. La polarisation nucléaire ne peut donc pas s'établir.

### Remarque sur la détection du signal avec une pompe modulée en polarisation

Faisons l'hypothèse que les noyaux soient capables de s'orienter en une vingtaine de microsecondes. Dans cette configuration de modulation, le signal détecté à la fréquence du modulateur correspond à la différence de polarisation entre une excitation  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Un effet nucléaire qui aurait pour conséquence de déplacer le minimum de polarisation de manière symétrique en fonction du champ appliqué et de la polarisation d'excitation, ne serait pas mesuré. Le fait de n'observer aucune manifestation nucléaire sur le signal signifie, en toute rigueur, que si les noyaux ont pu s'orienter, les conséquences sur le signal sont symétriques par rapport au champ appliqué et à la polarisation d'excitation.

### 6.3.2 Expériences en configuration Faraday sous excitation polarisée

Les résultats présentés dans la figure 6.5(b) sont obtenus avec une polarisation d'excitation constante<sup>4</sup>. La pompe est modulée en intensité par un modulateur acousto-optique<sup>5</sup> à une fréquence  $\frac{1}{T_{mao}} = 100 \text{ kHz}$ . Le rapport cyclique de modulation est voisin de 95%, dans le but de maximiser le temps  $T_c$  de pompage optique par rapport au temps sombre  $T_s$  où le système relaxe librement :  $T_c = 9.5 \mu\text{s}$  et  $T_s = T_{mao} - T_c = 500 \text{ ns}$ .

Dans cette configuration, on constate que le minimum de la polarisation de spin en fonction du champ magnétique est déplacé de l'origine. Ce déplacement est à la hauteur de  $\sim 1 \text{ mT}$ . Nous interprétons cet effet comme une manifestation de la polarisation nucléaire sur le spin du trou. Afin de consolider cette hypothèse, nous avons fait varier certains paramètres expérimentaux :

- En fonction de la polarisation circulaire d'excitation ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ), on constate, sur les figures 6.6 (a) et (b), que le déplacement du minimum de polarisation de spin du trou change de signe.

4. Pour diminuer les fluctuations du signal liées aux vibrations mécaniques du support, nous utilisons un cryostat de type "galette" Oxford et une bobine extérieure délivrant jusqu'à 40 mT à l'endroit de l'échantillon. De par sa géométrie, ce type de cryostat présente une meilleure stabilité que les cryostats magnétiques précédemment utilisés.

5. La modulation d'intensité est nécessaire pour conserver un rapport signal à bruit acceptable.

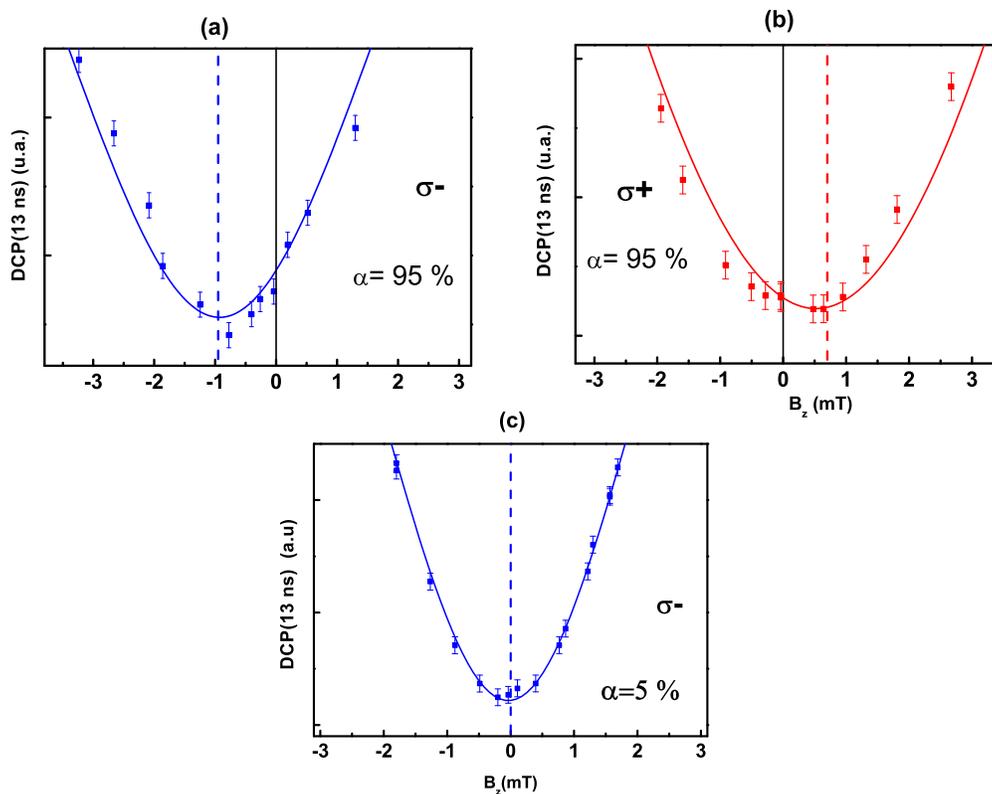


FIGURE 6.6: Signaux de DCP ( $\approx 13$  ns), mesurés en modulation d'intensité. (a) Polarisation  $\sigma^-$ , rapport cyclique  $\alpha = 95\%$ . (b) Polarisation  $\sigma^+$ , rapport cyclique  $\alpha = 95\%$ . (c) Polarisation  $\sigma^-$ , rapport cyclique  $\alpha = 5\%$ .

- Pour un rapport cyclique de 5% ( $T_c = 500$  ns et  $T_s = 9.5$   $\mu$ s), la courbe de polarisation de spin du trou est symétrique en fonction du champ magnétique appliqué, il n'y a pas de déplacement du minimum [figure 6.6(c)].

Ces observations sont cohérentes avec la présence d'une polarisation nucléaire dans notre échantillon. En effet, avec un faible rapport cyclique  $\alpha$ , le temps de pompage  $T_c$  où la polarisation nucléaire se construit, est trop faible devant le temps  $T_s$  où la polarisation des noyaux relaxe librement. De plus, l'inversion du déplacement avec l'hélicité de la polarisation d'excitation est également cohérente avec une orientation des noyaux par le spin des porteurs. Avant d'établir si la polarisation dynamique des noyaux est induite par l'électron dans l'état trion ou par le trou résident, nous discutons du type d'effet nucléaire observé.

### 6.3.3 Interprétation : champ Overhauser ou champ Knight ?

Expérimentalement, nous constatons un unique minimum sur la courbe de polarisation du trou en fonction du champ Faraday, et l'amplitude du déplacement est de  $\simeq 1$  mT. Mesuré à  $\sim 13$  ns sur des boîtes dopées p, ce déplacement peut être attribué soit au champ

Overhauser agissant sur le trou  $B_n^h$ , soit au champ Knight induit par le trion et par le trou résident (nous avons discuté ce point dans la partie 6.2.3 ). Il nous faut maintenant déterminer si c'est l'un ou l'autre des champs effectifs qui provoque le déplacement expérimental observé.

Si l'amplitude du déplacement semble cohérente avec les mesures de champ Knight réalisées sous excitation continue sur des boîtes dopées n [17, 33] ( $B_k \sim 0.5$  mT), en configuration pulsée sur des boîtes dopées p l'analyse est différente.

Dans notre cas, le champ Knight est plus petit et l'on ne peut pas négliger la contribution du trou devant celle de l'électron dans l'état trion. En effet, contrairement aux expériences sous excitation continue, la polarisation de spin de l'électron dans l'état trion photocréé n'est pas entretenu. Avec un temps de vie du trion de 800 ps pour une impulsion toutes les 13 ns, le taux de présence de l'électron est considérablement réduit. D'un autre côté, le trou résident est 10 fois moins couplé aux noyaux que l'électron.

Afin de lever toute ambiguïté, nous calculons le champ Knight moyen induit par l'électron dans l'état trion et celui induit par le trou résident. Nous comparons ensuite ces valeurs à l'amplitude du déplacement expérimental observé.

### Calcul du champ Knight

Notre mesure nous renseigne sur les polarisations photocréée et résidente. Cela nous permet de calculer le champ Knight pour chacune des espèces polarisées.

A l'aide de l'expression (6.9), et en considérant la valeur moyenne du carré de la fonction d'onde à la hauteur de  $|\Phi|_{e,h}^2 = \frac{2}{\nu_0 N}$ , le champ Knight moyen perçu par chaque noyau est donné par :

$$B_k^e = -\frac{2}{N} \langle S_z^e \rangle \sum_{\varepsilon} x_{\varepsilon} \frac{A_{\varepsilon}^e}{\mu_I^{\varepsilon}} = B_{k,max}^e \langle S_z^e \rangle \quad (\text{induit par l'électron dans l'état trion}) \quad (6.10)$$

$$B_k^h = -\frac{2}{N} \langle S_z^h \rangle \sum_{\varepsilon} x_{\varepsilon} \frac{C_{\varepsilon}^h}{\mu_I^{\varepsilon}} = B_{k,max}^h \langle S_z^h \rangle \quad (\text{induit par le trou résident}) \quad (6.11)$$

où  $N$  est le nombre de noyaux,  $x_{\varepsilon}$  est la composition chimique des boîtes quantiques telle que  $\sum_{\varepsilon} x_{\varepsilon} = 1$ . En considérant  $x_{In} = x_{As} = 0.5$ ,  $N = 10^5$ ,  $A_{In}^e = 56 \mu\text{eV}$ ,  $A_{As}^e = 46 \mu\text{eV}$ ,  $|C_{In}^h| = 4.4 \mu\text{eV}$ ,  $|C_{As}^h| = 4.0 \mu\text{eV}$ ,  $\mu_{In} = 5.53 \mu_N$ ,  $\mu_{As} = 1.44 \mu_N$  [118, 119, 63], on aboutit à  $|B_{k,max}^e| \simeq 14$  mT et  $|B_{k,max}^h| \simeq 1.3$  mT. La justesse du calcul de  $B_k^e$  et  $B_k^h$  repose maintenant sur l'évaluation des polarisations moyennes de spin de l'électron  $\langle S_z^e \rangle$  et du trou  $\langle S_z^h \rangle$ .

En régime stationnaire, ces polarisations moyennes sont calculées à l'échelle de la période de répétition du laser :

$$\langle S_z^e \rangle = \frac{1}{T_L} \int_0^{T_L} S_z(t) dt = \frac{S_z^e(0)}{T_L} \int_0^{T_L} e^{-t/T_r} R^e(t) dt \quad (6.12)$$

$$\langle S_z^h \rangle = \frac{1}{T_L} \int_0^{T_L} S_z^h(t) dt \simeq \frac{S_z^h(0^+)}{T_L} \int_0^{T_L} R^h(t) dt \quad (6.13)$$

où  $S_z^e(0)$  et  $S_z^h(0^+)$  sont, respectivement, les polarisations du trion et du trou après absorption de l'impulsion pompe<sup>6</sup>,  $T_r$  (800 ps) est le temps de vie radiatif du trion et  $T_L$  (13 ns) est la période des impulsions laser.  $R^{e,h}(t)$  représentent les fonctions de relaxation de spin du trou et de l'électron en fonction du temps [3, 63].

Bien que les polarisations ne soient pas mesurées de façon absolue, la capacité du modèle (cf. chap 4) à rendre compte des résultats expérimentaux nous permet de l'utiliser pour faire une évaluation précise de ces deux grandeurs.

On obtient les taux de polarisation moyens  $\langle S_z^e \rangle \simeq \frac{2,5}{100} S_z^e(0)$  et  $\langle S_z^h \rangle \simeq \frac{6}{10} S_z^h(0^+)$ . Pour une aire d'impulsion  $\pi$ , on obtient  $S_z^e(0) \simeq 0,18$  et  $S_z^h(0^+) \simeq 0,25$ . Finalement, les champs Knight moyens induits, par l'électron dans l'état trion et le trou résident, sont respectivement  $B_k^e \simeq 0.06$  mT et  $B_k^h \simeq 0.2$  mT.

Le calcul nous mène à deux constats. Les valeurs obtenues sont relativement faibles conformément aux raisons énoncées au début du paragraphe. La contribution majoritaire au champ Knight est celle induite par la polarisation de spin du trou, qui est trois fois plus forte que celle de l'électron dans l'état trion.

### Remarques

Le calcul réalisé ici, avec des paramètres standard pour un ensemble de boîtes d'InAs, est sans doute proche de la réalité. Cependant, le nombre  $N$  de noyaux par boîte quantique ne peut être vérifié précisément. Néanmoins, la comparaison avec les résultats obtenus, par les auteurs de la référence [113] [cf. figure 6.2], sur un ensemble de boîtes d'InAs dopées n, permet de confirmer l'estimation de  $B_k^h$  obtenue ci-dessus. En effet, Cherbunin et coll. mesurent un déplacement Knight de la polarisation résidente d'électrons d'environ  $B_k^e=1-2$  mT. La polarisation moyenne de l'électron résident est, dans cette expérience, voisine de 30 %. Ce niveau de polarisation moyen est comparable à celui du trou résident mesuré dans notre expérience (cf. chap. 4). Ils mesurent donc un champ Knight induit par l'électron résident dix fois plus fort que celui que l'on a estimé pour le trou résident. La constante hyperfine de l'électron étant dix fois plus forte que celle du trou, ce résultat est cohérent avec notre estimation de  $B_k^h$ .

### 6.3.4 Conclusion partielle

Les valeurs calculées du champ Knight sont d'un ordre de grandeur inférieures à l'amplitude du déplacement expérimental observé (cf. figure 6.5). De plus, en raison de l'inhomogé-

6. En raison de  $T_L \gg T_r$ , on néglige la polarisation de spin du trou pendant le temps de vie du trion. La notation  $S_z^h(0^+)$  correspond à la polarisation de spin du trou après la recombinaison radiative du trion.

néité de la fonction d'onde, la compensation du champ Knight par un champ extérieur n'est pas réalisée pour l'ensemble des noyaux d'une boîte quantique ; cela entraîne une baisse très modeste de la polarisation et donc un effet difficilement observable. Ce phénomène est certainement présent sur notre échantillon mais des déplacements d'environ 0,1 mT faiblement marqués ne sont pas mesurables dans notre configuration de détection.

En conclusion, l'estimation du champ Knight dans notre échantillon nous permet d'écarter cette hypothèse comme explication au déplacement observé sur la figure 6.5. Néanmoins, T. Auer et coll. [93] ont mesuré sur un échantillon de boîtes d'InAs un champ local dipolaire d'environ 0.1mT ; le champ Knight présent dans notre échantillon ( $B_k^h \simeq 0.2$  mT) devrait en partie écranter le champ local et permettre ainsi une polarisation nucléaire sans champ magnétique extérieur.

Le déplacement de la polarisation observé, qui n'est pas dû aux champs Knight, est donc attribué à la présence du champ Overhauser  $B_n^h$  subi par le trou, qui est compensé par le champ appliqué à l'endroit du minimum de la polarisation (figure 6.5 et 6.6). Le champ  $B_n^h$  mesuré à la hauteur de  $\sim 1$  mT<sup>7</sup> est une moyenne sur l'ensemble des boîtes quantiques. En considérant une constante hyperfine indépendante de l'espèce nucléaire :  $|C_\varepsilon^h| = |C^h| \simeq 4\mu\text{eV}$ , ce champ conduit à un taux de polarisation nucléaire  $\rho_I = B_n^h \frac{\mu_B g_h}{2C^h \sum x_\varepsilon I_\varepsilon} \simeq 0.5\%$ . Nous discutons de cette valeur à la fin du chapitre. En accord avec les récents travaux de Chekhovich et coll. et Fallahi et coll. [114, 66], le couplage hyperfin trou-noyaux permet de sonder la polarisation nucléaire à travers le terme longitudinal de l'interaction. Cette observation est de poids car elle est indépendante du caractère mélangé du trou de valence.

Maintenant que nous avons précisé la nature du déplacement mesuré, nous allons expliciter son origine. Le trou, comme l'électron photocréé, participe aux effets nucléaires. Nous avons vu qu'en dynamique pulsée, sur des boîtes dopées p excitées à résonance, la contribution de l'électron dans l'état trion au champ Knight est réduite et celle du trou, en comparaison, est exaltée :  $B_k^h \simeq 3B_k^e$ . Mais le champ Knight n'est pas la quantité pertinente pour déterminer si la polarisation nucléaire est induite majoritairement par le trion ou par le trou résident. La quantité importante est le taux de moment cinétique cédé aux noyaux entre deux impulsions<sup>8</sup>, qui dépend de la polarisation du porteur de spin après l'impulsion, du temps de présence dans la boîte, et de l'intensité du couplage transverse avec les noyaux.

## 6.4 Origine de la polarisation des noyaux

Nous avons vu au chapitre 4 que le mécanisme de polarisation du trou est différent suivant que l'excitation est résonnante ou non. Cela conduit, pour une même polarisation

7. L'électron dans l'état trion ressent un champ Overhauser moyen de  $B_n^e = B_n^h \frac{A^e g_h}{C^h g_e} \simeq 30$  mT.

8. Cette quantité n'est pas toujours proportionnelle au champ Knight. Par exemple, en dynamique pulsée ( $T_L = 13$  ns), pour une polarisation identique, avec  $T_\Delta^e \simeq 500$  ps, un électron résident ou un électron photocréé avec un temps de vie de 2 ns, échangent presque la même quantité de moment cinétique avec les noyaux entre deux impulsions. Mais le champ Knight de l'électron résident sera environ 10 fois plus élevé que celui de l'électron photocréé (l'électron conserve 1/3 de sa polarisation de spin initiale).

Excitation polarisée $\sigma^-$	Résonnante	Non résonnante
$S_z^h = \frac{1}{2}(\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow})$	$< 0$	$> 0$
$S_z^e = \frac{1}{2}(\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow})$	$> 0$	$> 0$

TABLE 6.1: *Récapitulatif de l'orientation des polarisations de spin du trou  $S_z^h$  et du trion  $S_z^e$  en fonction de la configuration d'excitation, pour une polarisation de pompe  $\sigma^-$ .  $\rho_{h\uparrow}$  ( $\rho_{T\uparrow}$ ) et  $\rho_{h\downarrow}$  ( $\rho_{T\downarrow}$ ) désignent, respectivement, les populations des états de spin du trou (trion)  $|h\uparrow\rangle$  ( $|T\uparrow\rangle$ ) et  $|h\downarrow\rangle$  ( $|T\downarrow\rangle$ ).*

d'excitation, à un contrôle de l'orientation de la polarisation de spin du trou, indépendant de l'orientation de l'état excité de trion. Les orientations moyennes des polarisations de spin du trou et du trion, en fonction de la configuration d'excitation, pour une excitation polarisée  $\sigma^-$ , sont rappelées sur le tableau 6.1.

Pour une même polarisation de pompe, entre les deux configurations d'excitation, on inverse la polarisation de spin du trou tout en conservant celle du trion. En conséquence, pour déterminer si la polarisation des noyaux est induite par le trou ou par le trion dans notre échantillon, nous procédons à la même expérience que celle présentée dans la partie précédente, mais dans une configuration d'excitation non résonnante. Nous comparons ensuite le sens du déplacement Overhauser de la polarisation du trou en fonction de la configuration d'excitation.

#### 6.4.1 Déplacement Overhauser sous excitation non résonnante

La figure 6.7 (b) présente l'évolution de la polarisation de spin du trou, en fonction du champ magnétique appliqué, dans la configuration d'excitation hors résonnante (cette configuration est détaillée au chapitre 4). L'énergie de la pompe est de 1.39 eV<sup>9</sup> avec une puissance d'environ 1Wmm<sup>-2</sup>. L'énergie de la sonde (1.35 eV) ainsi que la polarisation circulaire de la pompe ( $\sigma^-$ ) sont les mêmes que dans la configuration résonnante, qui est rappelée sur la figure 6.7 (a). On constate également sur la figure 6.7 (b), un déplacement du minimum de la polarisation de spin du trou. Ce déplacement est de même amplitude et de sens opposé au cas résonnant [cf. figure 6.7 (a)].

#### Interprétation

Pour une puissance de pompe voisine de 1Wmm<sup>-2</sup>, les polarisations de spin du trou et du trion photocréé sont du même ordre dans les deux configurations d'excitation (cf. chapitre 4). En conséquence, les champs Knight sont également comparables en amplitude entre les deux configurations d'excitation ; les arguments discutés dans la partie précédente sont donc conservés. On exclut donc, également, une manifestation des champs Knight : le déplacement est associé au champ Overhauser  $B_n^h$  ressenti par le trou.

Le temps de capture des excitons photocréés, à une énergie de 1.39 eV, est de l'ordre de 10

9. A une énergie de 1.39 eV, la pompe excite, a priori, le continuum des états mixtes entre les états liés des boîtes quantiques et la couche de mouillage.

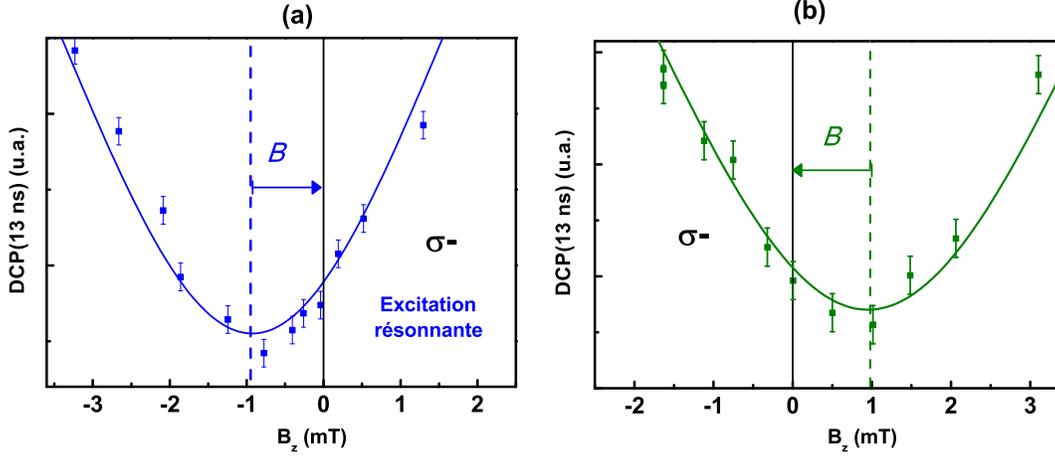


FIGURE 6.7: Signaux de DCP, obtenus à un délai pompe-sonde de  $\sim 13$  ns, en fonction du champ magnétique appliqué. (a) Excitation résonnante à 1.35 eV, polarisée  $\sigma^-$ . (b) Excitation hors résonnante à 1.39 eV, polarisée  $\sigma^-$ . Dans les deux configurations d'excitation, l'énergie de la sonde est de 1.35 eV. L'expérience est réalisée avec un MAO et des rapports cycliques de 95% (a) et 90% (b).

ps [77]. On peut donc raisonnablement supposer que l'orientation des noyaux par interaction hyperfine a lieu, essentiellement, lorsque les particules photocréées ont relaxé sur les niveaux de la transition fondamentale des boîtes quantiques. Il est donc maintenant possible de comparer le sens du déplacement Overhauser entre les configurations d'excitation résonnante et hors résonnante, pour une polarisation d'excitation donnée :

1. Hors résonance, l'électron dans l'état trion et le trou résident cèdent aux noyaux, en moyenne, un moment cinétique de spin de même orientation. Pour une pompe polarisée  $\sigma^-$  (cf. tableau 6.1), on obtient :  $S_z^e > 0 \Rightarrow I_z > 0$  et  $S_z^h > 0 \Rightarrow I_z > 0$ .
2. A résonance, l'électron dans l'état trion et le trou n'orientent pas les noyaux dans le même sens. Pour une pompe polarisée  $\sigma^-$ , on obtient :  $S_z^e > 0 \Rightarrow I_z > 0$  et  $S_z^h < 0 \Rightarrow I_z < 0$ .

Entre les deux configurations d'excitation, pour une polarisation de pompe donnée, seule la polarisation du trou change de signe.

Expérimentalement, on constate que le signe du champ Overhauser  $B_n^h \propto I_z$  change entre les deux configurations d'excitation (cf. figure 6.7). Le déplacement Overhauser  $B_n^h$  suit manifestement l'orientation de spin du trou. Cette dernière expérience nous permet donc de conclure que la polarisation nucléaire est majoritairement induite par le trou dans notre échantillon.

### Remarques

En toute rigueur, l'inversion du déplacement Overhauser démontre seulement que la polari-

sation des noyaux est induite par le trou dans le cas résonnant. En effet, dans la configuration hors résonnante, le trou et le trion ont la même orientation de spin. Les contributions respectives du trou et de l'électron aux effets nucléaires, entre les deux configurations d'excitation, sont déterminées par les polarisations de spin après impulsion :  $S_z^e(0)$  et  $S_z^h(0)$ . Ces polarisations sont comparables entre les deux configurations d'excitation. Cependant, les modèles présentés au chapitre 4 montrent que  $S_z^e(0)$  est plus élevée dans le cas hors résonnant que dans le cas résonnant. Concernant  $S_z^h(0)$ , c'est le cas contraire. Il n'est donc pas possible de conclure, sans modélisations précises à l'appui, sur les contributions respectives du trou et de l'électron au phénomène de polarisation nucléaire, dans le cas hors résonnant.

### 6.4.2 Sens de la polarisation nucléaire sous excitation résonnante

Le sens du champ Overhauser  $B_n^h$  permet, également, de confirmer le rôle du trou dans la polarisation des noyaux, sous excitation optique résonnante. En effet, les polarisations de spin du trou et du trion étant alors opposées, le signe du champ Overhauser  $B_n^h$ , pour une polarisation d'excitation donnée, doit être différent selon que la polarisation nucléaire est induite par le trou ou par l'électron dans l'état trion. Le champ Overhauser moyen  $B_n^h$  est donné par la relation suivante [cf. expression (6.4)] :

$$\vec{B}_n^h = \frac{-1}{g_h \mu_B} \sum_j C_j^h \langle I_z^j \rangle \vec{e}_z \quad (6.14)$$

où  $C_j^h = C_\varepsilon^h |\Phi_h(\vec{r}_j)|^2 \nu_0$ . Les auteurs de la référence [66] ont mesuré une constante hyperfine négative pour le trou dans les boîtes d'InAs (ce point est discuté dans le chapitre 3). Cette mesure est le reflet d'une constante hyperfine moyenne sur les divers noyaux d'espèces différentes, constituant une boîte quantique. En considérant ce résultat, on peut établir que  $\langle C_\varepsilon^h \rangle = C^h < 0$ . Le signe de  $B_n^h$  est ainsi donné par :

$$\text{sgn}[B_n^h] = -\frac{\text{sgn}[C^h]}{\text{sgn}[g_h]} \cdot \text{sgn}[\langle I_z \rangle] = \frac{\text{sgn}[\langle I_z \rangle]}{\text{sgn}[g_h]} \quad (6.15)$$

Avec la même convention, pour l'hamiltonien Zeeman, que celle prise ici, à savoir :  $H = g_e \mu_B \vec{S}^e \cdot \vec{B}$  pour un électron et  $H = -g_h \mu_B \vec{S}^h \cdot \vec{B}$  pour un trou, et  $\mu_B$  positif, les auteurs des références [120, 58, 117] mesurent un facteur de Landé longitudinal du trou négatif, sur des boîtes d'InAs. Finalement, l'expression (6.15) devient

$$\text{sgn}[B_n^h] = -\text{sgn}[\langle I_z \rangle] \quad (6.16)$$

Sachant que l'orientation des noyaux est imposée par la polarisation du porteur qui l'induit, on obtient :

$$\text{sgn}[B_n^h] = -\text{sgn}[S_z] \quad (6.17)$$

Précisons que, dans les expériences présentées dans ce chapitre, l'hélicité des polarisations circulaires d'excitation ainsi que le sens du champ magnétique sont déterminés<sup>10</sup> par rapport à l'axe optique. Sur les courbes expérimentales de la figure (6.6), on observe :

10. Le sens des polarisations circulaires d'excitation est étalonné par rapport au déplacement Zeeman de l'énergie de luminescence sur un échantillon de CdMnTe/CdTe.

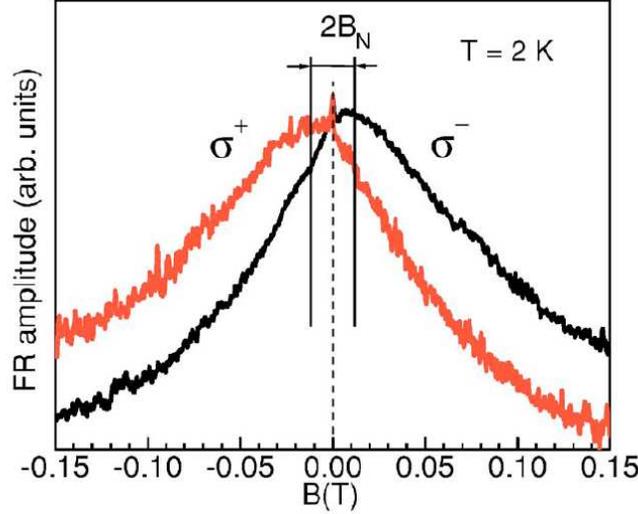


FIGURE 6.8: Courbes de rotation Faraday mesurées à  $\sim 13\text{ns}$ , en configuration pompe-sonde, sur un ensemble de boîtes dopées  $n$ . L'excitation est non résonnante. Figure issue de la référence [116].

- pour une excitation polarisée  $\sigma^-$ ,  $B_n^{h,\sigma^-} > 0$ ,
- pour une excitation polarisée  $\sigma^+$ ,  $B_n^{h,\sigma^+} < 0$ .

Sous excitation résonnante, les orientations des polarisations de spin du trou et du trion, en fonction de la polarisation d'excitation, sont données par (cf. tableau 6.1) :

$$S_z^{h,\sigma^-} < 0, S_z^{h,\sigma^+} > 0, S_z^{e,\sigma^-} > 0, S_z^{e,\sigma^+} < 0 \quad (6.18)$$

La relation (6.17) est vérifiée expérimentalement (cf. figure 6.6) à condition que la polarisation nucléaire soit induite par le spin du trou résident.

### 6.4.3 Efficacité du processus de polarisation dynamique, excitation continue versus pulsée

Le taux de polarisation des noyaux est le résultat d'un équilibre entre l'orientation optique des noyaux et la relaxation nucléaire. Nous discutons ici de l'efficacité de la polarisation dynamique nucléaire en fonction de la configuration d'excitation pulsée ou continue.

Dans les expériences menées sous excitation continue sur des boîtes chargées par un électron ou par un trou [17, 16], le taux de polarisation nucléaire est de 5 à 10% pour des champs magnétiques compris entre 0 et 200 mT. Comparé à ces expériences, le taux que l'on atteint dans notre cas est d'un ordre de grandeur plus faible :  $\rho_I \simeq 0,5\%$ . L'explication repose en partie sur le protocole d'excitation pulsée.

Pour une boîte d'état de charge  $X^+$ , l'électron photocréé dans l'état trion cède son moment cinétique aux noyaux et recombine ( $T_\Delta^e \leq T_r$ ). Ce processus est immédiatement renouvelé

en excitation continue<sup>11</sup>, ce qui optimise la quantité de moment cinétique de spin cédée aux noyaux par unité de temps. En revanche, en excitation pulsée, il faut attendre 13 ns pour injecter un nouveau porteur de spin, et la quantité de moment cinétique, transférée aux noyaux par le porteur, entre deux impulsions ne peut pas excéder 1. Ce protocole d'excitation limite donc l'efficacité de l'orientation optique des noyaux .

De plus, sous excitation pulsée, à faible champ magnétique, l'intensité du couplage hyperfin ne joue pas un rôle déterminant, du moment que celle-ci est suffisante pour relaxer le spin du porteur résident en un temps comparable à la période des impulsions laser. En effet, un électron résident orienté subit sur 13 ns plusieurs processus flip-flop, qui conduisent celui-ci à relaxer les 2/3 de sa polarisation de spin en  $\sim 1$  ns. De même, un trou résident mélangé transfère aux noyaux environ la moitié<sup>12</sup> de sa polarisation de spin en  $\sim 10$  ns. Finalement, un électron ou un trou résidents apportent aux noyaux quasiment la même quantité de moment cinétique entre deux impulsions séparées de 13 ns.

Les résultats de I. Yugova et coll.[116], présentés sur la figure 6.8, étayent cette hypothèse : sur un ensemble de boîtes d'InAs dopées n, avec une configuration pompe-sonde identique à la nôtre, ils mesurent un  $B_n^e$  induit par l'électron résident d'environ 15 mT. Avec un facteur de Landé longitudinal de l'électron de 0.6, on obtient un taux de polarisation nucléaire de 0,25 %<sup>13</sup>. Ce taux est comparable au nôtre, bien que la polarisation des noyaux soit induite par l'électron résident. Cela plaide donc bien en faveur du raisonnement précédent.

#### 6.4.4 Limites de l'expérience

La figure 6.9 présente l'évolution de la polarisation de spin du trou pour une gamme de champs magnétiques comprise entre -30 et 30 mT. L'expérience est identique à celle présentée sur les figures 6.6 (a) et (b). Conjointement au déplacement du minimum de la polarisation de spin du trou, on constate que les courbes sont nettement dissymétriques sur toute la gamme de champ explorée, et ce, en fonction du sens du champ appliqué et de la polarisation d'excitation. Cette dissymétrie est également le reflet de la présence du champ nucléaire  $B_n^h$ , selon que celui-ci s'ajoute ou s'oppose au champ appliqué.

On pourrait imaginer extraire le champ Overhauser, en comparant à niveau de signal égal, le champ appliqué entre deux polarisations d'excitation différentes. Cependant l'analyse du comportement de la polarisation de spin loin du minimum, afin d'extraire  $B_n^h$ , est complexe. La raison est le comportement non linéaire de la polarisation des noyaux en fonction du champ appliqué et de la polarisation d'excitation [110, 111].

11. Pour une boîte d'état de charge  $X^-$ , le même argument s'applique pour la polarisation résidente de l'électron issue de la recombinaison radiative du trion.

12. La quantité de moment cinétique de spin cédée aux noyaux, par le spin du trou, dépend du coefficient  $\beta$  de mélange entre les états de trous lourds et légers.

13. Dans cet article [116], le taux de polarisation de l'électron résident n'est pas explicitement précisé, de même que le rapport cyclique de modulation d'intensité du faisceau pompe. Les auteurs mentionnent seulement que le pompage est optimisé en excitant dans la couche de mouillage. Cependant, sur un échantillon similaire, excité en continu dans les mêmes conditions d'énergie et de puissance, la même équipe obtient un taux de polarisation voisin de 20 % [113].

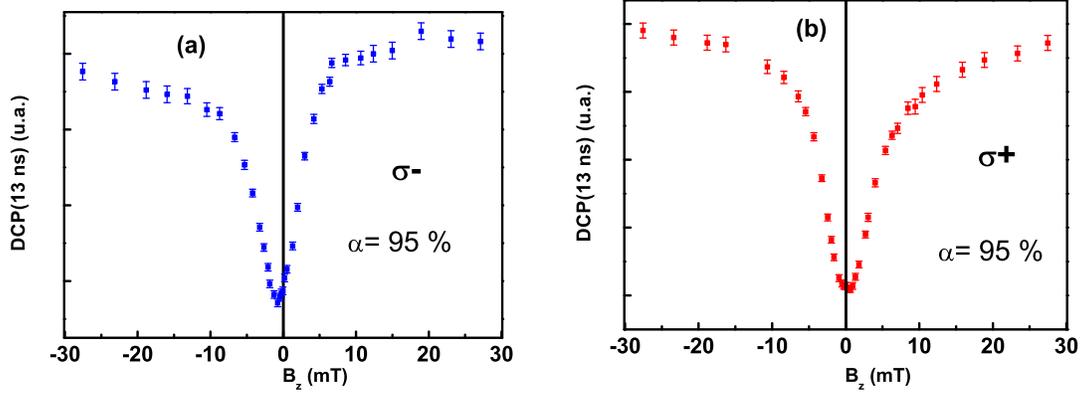


FIGURE 6.9: Signaux de DCP, obtenus à 13 ns, en fonction du champ magnétique appliqué, pour un rapport cyclique de modulation d'intensité  $\alpha = 95\%$ . (a) Pour une excitation polarisée  $\sigma^-$ . (b) Pour une excitation polarisée  $\sigma^+$ . La configuration d'excitation est résonnante.

Ajoutons qu'en fonction du champ magnétique, les contributions relatives du trou et de l'électron dans l'état trion, à la polarisation nucléaire, changent. Si le champ total  $B_z + B_n^h$  ressenti par le trou dépasse la dizaine de mT, le processus flip-flop trou-noyaux devient peu probable et la contribution du trou aux effets nucléaires est, à priori, réduite. Le couplage électron-noyaux étant plus robuste par rapport au champ magnétique, l'électron peut dans ce cas jouer un rôle majoritaire. L'analyse des courbes de polarisation en est d'autant plus délicate.

En conclusion, dans notre configuration d'observation des effets nucléaires, nous mesurons quantitativement le champ  $B_n^h$  seulement à l'endroit du minimum de la polarisation de spin, où ce dernier est compensé par le champ appliqué.

Ajoutons, bien sûr, que le caractère inhomogène du champ  $B_n^h$  mesuré sur un ensemble de boîtes, constitue également une limite à notre expérience.

## 6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré que notre technique pompe-sonde permet d'étudier les effets nucléaires sur un ensemble de boîtes quantiques. À travers le terme longitudinal de l'interaction hyperfine trou-noyaux, nous avons mesuré le champ Overhauser  $B_n^h$  exercé sur le spin résident de trou. Nous avons observé que, sous excitation pulsée résonnante, le trou induit majoritairement la polarisation dynamique nucléaire. Le couplage transverse trou-noyaux, provenant de l'anisotropie des contraintes exercées sur la boîte, conduit le spin du trou à céder son spin aux noyaux en typiquement 10 ns. Le spin du trou est gardé en mémoire par le bain nucléaire suffisamment longtemps pour induire une polarisation des noyaux mesurable. Ajoutons que cette mesure est rendue possible grâce à notre configuration d'excitation pulsée. Le niveau de polarisation ( $\sim 0,5\%$ ) atteint ne fait pas du trou un candidat particulièrement prometteur pour manipuler le spin des noyaux. Cependant, l'ob-

servation d'une polarisation des noyaux induite par le trou renforce la nécessité de prendre en compte, dans toute interprétation future, l'interaction hyperfine subie par le trou. Cette dernière ayant une influence non seulement sur la dynamique de spin du trou, mais également sur celle des noyaux.



# Chapitre 7

## Évolution cohérente du spin du trou

### Sommaire

---

7.1	Synchronisation des modes de précession, expérience à une impulsion . . .	<b>146</b>
7.1.1	Description du système . . . . .	146
7.1.2	Préparation du système dans un état cohérent . . . . .	147
7.1.3	Inhomogénéité du facteur de Landé . . . . .	149
7.1.4	Expérience . . . . .	150
7.1.5	Modélisation du signal de cohérence . . . . .	153
7.2	Expérience à deux impulsions, écho du signal de cohérence . . . . .	<b>158</b>
7.3	Conclusion et perspectives . . . . .	<b>160</b>

---

A la différence des qubits dans les systèmes excitoniques, formés d'un état fondamental et d'un état excité [121, 122, 123], les qubits de spin peuvent être composés par la superposition cohérente de deux états fondamentaux. L'avantage certain que présentent ces derniers est d'avoir un temps de cohérence  $T_2$  qui n'est pas limité par le temps de vie radiatif. En pratique, la délicate superposition cohérente des états "up" et "down" s'obtient en appliquant un champ magnétique transverse (configuration Voigt) à la direction d'initialisation du spin.

Concernant le spin de l'électron de conduction, plusieurs travaux majeurs ont mis en évidence une évolution cohérente du spin sur un temps de l'ordre de la micro-seconde [124, 125, 126]. L'évolution cohérente du spin du trou a été très récemment observée par les auteurs des références [127, 128]. Cependant plusieurs questions demeurent en suspens après ces travaux, notamment au niveau du temps de cohérence. C'est dans ce contexte que se situe notre étude.

Nous présentons une étude du DCP résolu en temps sous champ magnétique transverse. Nous mettons tout d'abord en évidence la précession temporelle du spin du trou dans un champ magnétique transverse. Ensuite, nous montrons que ce signal de cohérence est finement manipulable par un protocole d'excitation à deux impulsions.

Ce dernier chapitre fait office de perspective autant par le fait que les résultats obtenus sont très récents, que par la possibilité d'études intéressantes qui en découlent.

## 7.1 Synchronisation des modes de précession, expérience à une impulsion

### 7.1.1 Description du système

L'échantillon étudié est un ensemble de boîtes dopées p à  $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$  (74K31). Le champ magnétique, que nous notons  $\vec{B}_x$ , est appliqué parallèlement à une des directions du plan de croissance de l'échantillon ; le champ  $\vec{B}_x$  est donc perpendiculaire à la direction de propagation  $\vec{e}_z$  de la lumière. Dans cette configuration, la base propre de l'énergie Zeeman est composée des quatre états suivants :

$$\begin{cases} |h\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|h\uparrow\rangle \pm |h\downarrow\rangle) \\ |T\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|T\uparrow\rangle \pm |T\downarrow\rangle) \end{cases} \quad (7.1)$$

Les états fondamentaux (excités) sont séparés en énergie d'une quantité  $\Delta_{h,x} = g_{h,x}\mu_B B_x$  ( $\Delta_{T,x} = g_{e,x}\mu_B B_x$ ), où  $g_{h,x}$  ( $g_{e,x}$ ) est le facteur de Landé transverse du trou (de l'électron). Les états  $|h\pm\rangle$  et  $|T\pm\rangle$  sont optiquement couplés suivant les règles de sélection représentées sur la figure 7.1. Dans la gamme de champ magnétique où nous travaillons (0-1 T), la largeur spectrale des impulsions laser ( $\sim 0.5 \text{ meV}$ ) est bien supérieure à la séparation Zeeman des états propres (0 – 15  $\mu\text{eV}$ , pour  $g_{h,x}$ ,  $g_{e,x} \simeq 0.5$ ). Les deux états fondamentaux sont donc couplés aux deux états excités de manière identique. En conséquence, l'absorption

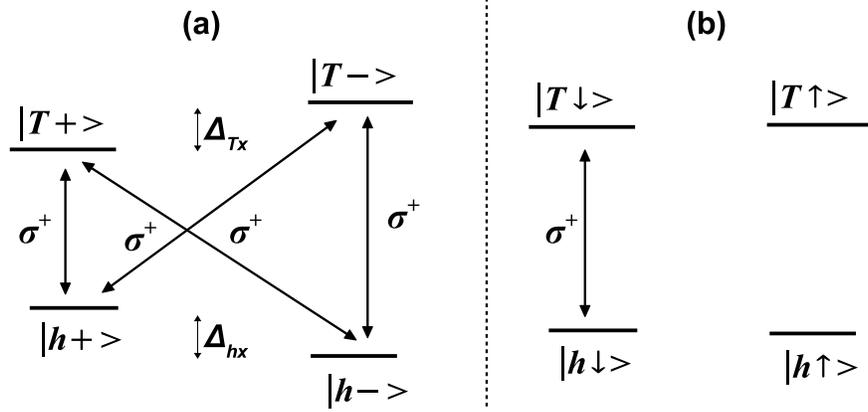


FIGURE 7.1: Règles de sélection optique pour une transition polarisée  $\sigma^+$ , en présence d'un champ magnétique  $B_x$ . (a) Dans la base des états propres de l'énergie. (b) Dans la base des états suivant  $z$ .

d'une impulsion polarisée, typiquement  $\sigma^+$ , prépare les états excités du système dans une superposition cohérente des états propres du trion :  $|T\downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|T+\rangle - |T-\rangle)$ . De même, l'impulsion  $\sigma^+$ , stimule la formation d'une superposition cohérente des états fondamentaux de trou :  $|h\uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|h+\rangle + |h-\rangle)$ . Ce dernier point n'est pas complètement intuitif, nous le démontrons dans le paragraphe suivant.

### 7.1.2 Préparation du système dans un état cohérent

L'état initial du système, avant pompage optique, est déterminé par la température de l'échantillon. A une température cryogénique de 2 K, l'énergie thermique disponible est donnée par la quantité  $k_b T \simeq 200 \mu\text{eV}$ . Cette énergie est d'un ordre de grandeur supérieure à la séparation Zeeman des niveaux d'énergie. En accord avec la distribution de Maxwell-Boltzmann, l'état initial du système est un mélange statistique qui est décrit par une matrice densité équidiagonale, et ce, quelle que soit la base de description du système.

L'état initial  $\rho_0$  s'écrit donc, dans la base  $\{|h\uparrow\rangle, |h\downarrow\rangle, |T\uparrow\rangle, |T\downarrow\rangle\}$  :

$$\rho_0 = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (7.2)$$

Cet état, complètement mixte, n'est pas affecté par une transformation unitaire  $T$  agissant seulement à l'intérieur des multiplicités des niveaux fondamentaux et excités :  $\rho_0 = T\rho_0T^\dagger$ . La transformation qui nous concerne, ici, est celle induite par le champ  $\vec{B}_x$ , que l'on exprime

à l'aide de l'opérateur  $T_{B_x}$  suivant :

$$T_{B_x}(w_h, w_e) = \begin{bmatrix} \cos(\frac{w_h t}{2}) & -i \sin(\frac{w_h t}{2}) & 0 & 0 \\ -i \sin(\frac{w_h t}{2}) & \cos(\frac{w_h t}{2}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos(\frac{w_e t}{2}) & -i \sin(\frac{w_e t}{2}) \\ 0 & 0 & -i \sin(\frac{w_e t}{2}) & \cos(\frac{w_e t}{2}) \end{bmatrix} \quad (7.3)$$

où  $w_h = \Delta_{h,x}/\hbar$  et  $w_e = \Delta_{T,x}/\hbar$  sont, respectivement, les fréquences de précession de Larmor de spin du trou et de spin de l'électron dans l'état trion.

Comme nous l'avons mentionné ci-dessus, l'initialisation de la cohérence de spin provient du couplage avec la lumière. Étant donné que toutes les transitions optiques dans la base propre de l'énergie sont équivalentes [cf. figure 7.1 (a)], on peut décrire le couplage résonnant dans la base  $\{|h \uparrow\rangle, |h \downarrow\rangle, |T \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle\}$ . Précisons que la largeur temporelle de l'impulsion est inférieure aux périodes de précession ( $w_h^{-1}, w_e^{-1}$ ) du spin du trou et de l'électron. Dans ces conditions, les évolutions du système, induites par le champ magnétique et l'impulsion optique, peuvent être traitées séparément.

L'évolution du système induite par une impulsion résonnante, typiquement  $\sigma^+$ , se traduit à l'aide de l'opérateur suivant [129, 51] :

$$T_{\sigma^+}(\theta) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\frac{\theta}{2}) & 0 & -i \sin(\frac{\theta}{2}) \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & -i \sin(\frac{\theta}{2}) & 0 & \cos(\frac{\theta}{2}) \end{bmatrix} \quad (7.4)$$

où  $\theta$  est l'aire de l'impulsion optique. Après le couplage avec l'impulsion ( $t = 0^+$ ), le système est initialisé dans l'état  $\rho_I(0^+)$  tel que :

$$\rho_I(0^+) = T_{\sigma^+}(\theta)\rho_0 T_{\sigma^+}^\dagger(\theta) = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} - \alpha & 0 & \beta \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta^* & 0 & \alpha \end{bmatrix} \quad (7.5)$$

avec  $\alpha = \frac{1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2}$  et  $\beta = \frac{i}{4} \sin \theta$ . Les différences de populations des états du trou et du trion traduisent l'apparition des polarisations de spin dans les états excité et fondamental. Après l'initialisation optique à l'instant  $t = 0^+$ , l'évolution temporelle du système  $\rho_I(t)$ , induite par le champ magnétique, est donnée par la relation suivante :

$$\begin{aligned} \rho_I(t) &= T_{B_x}(w_h, w_e)\rho_I(0^+)T_{B_x}^\dagger(w_h, w_e) \quad (7.6) \\ &= \begin{bmatrix} \frac{1}{2} - \alpha \sin^2(\frac{w_h t}{2}) & \frac{i\alpha}{2} \sin(w_h t) & \beta \sin(\frac{w_e t}{2}) \sin(\frac{w_h t}{2}) & -i\beta \cos(\frac{w_e t}{2}) \sin(\frac{w_h t}{2}) \\ -\frac{i\alpha}{2} \sin(w_h t) & \frac{1}{2} - \alpha \cos^2(\frac{w_h t}{2}) & \beta \cos(\frac{w_e t}{2}) \sin(\frac{w_h t}{2}) & \beta \cos(\frac{w_e t}{2}) \cos(\frac{w_h t}{2}) \\ \beta^* \sin(\frac{w_e t}{2}) \sin(\frac{w_h t}{2}) & -i\beta^* \cos(\frac{w_h t}{2}) \sin(\frac{w_e t}{2}) & \alpha \sin^2(\frac{w_e t}{2}) & \frac{i\alpha}{2} \sin(\frac{w_e t}{2}) \\ i\beta^* \cos(\frac{w_e t}{2}) \sin(\frac{w_h t}{2}) & \beta^* \cos(\frac{w_e t}{2}) \cos(\frac{w_h t}{2}) & -\frac{i\alpha}{2} \sin(w_e t) & \alpha \cos^2(w_e t) \end{bmatrix} \end{aligned}$$

On constate, à travers les termes hors diagonaux non nuls de la matrice (7.6), que l'association du champ magnétique et du pulse permet de préparer un système, initialement mixte, dans un état contenant un certain degré de cohérence.

Expérimentalement, la mesure du signal de DCP nous renseigne sur les différences de populations des états du trou et du trion dans la base définie suivant la direction de propagation de la lumière :  $DCP \propto (\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}) - (\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow})$ . Avec  $(\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}) = \alpha \cos(w_h t)$  et  $(\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow}) = \alpha \cos(w_e t)$ , les oscillations des polarisations de spin, suivant  $z$ , du trou et du trion sont bien mesurables à travers notre expérience<sup>1</sup>.

Précisons que l'évolution décrite par la matrice (7.6) ne tient pas compte de la relaxation de la phase et de l'énergie. Au bout d'un temps supérieur au temps de vie radiatif  $T_r$ , les états du trion ne sont plus occupés, et les termes de cohérence proportionnels à  $\beta$  sont également nuls. En négligeant le phénomène de cohérence spontanée (nous discutons ce point dans le paragraphe 7.1.5), la recombinaison radiative du trion peuple de manière équiprobable et incohérente les deux états du trou.

Dans ces conditions, après la recombinaison radiative du trion, le système peut être décrit par la somme suivante :

$$\begin{aligned} \rho_I(t \gg T_R) &= \rho_I^{mixte} + \rho_I^{pur} \\ &= \frac{1-\alpha}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} + \alpha \begin{bmatrix} \cos^2(\frac{w_h t}{2}) & \frac{i}{2} \sin w_h t & 0 & 0 \\ -\frac{i}{2} \sin w_h t & \sin^2(\frac{w_h t}{2}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (7.7)$$

où  $\rho_I^{mixte}$  et  $\rho_I^{pur}$  traduisent, respectivement, les composantes mixte et pure de l'état du système  $\rho_I(t \gg T_R)$ . La composante  $\rho_I^{pur}$  permet d'exprimer l'observable de spin du trou par le vecteur de Bloch suivant (cf. chapitre 4) :

$$\vec{S}^h = \frac{\alpha}{2}(0, -\sin w_h t, \cos w_h t) \quad (7.8)$$

Cette première description de l'évolution du système est le point de départ de la modélisation que nous présentons dans le paragraphe 7.1.5.

### 7.1.3 Inhomogénéité du facteur de Landé

La première barrière qu'il nous faut franchir, pour mener à bien cette étude sur l'évolution cohérente du spin des porteurs, est l'inhomogénéité de l'échantillon d'ensemble de boîtes. En effet la dispersion du facteur de Landé, entre les différentes boîtes, conduit à un déphasage rapide des fréquences de précession des spins, en un temps typique  $T_2^*$  de l'ordre de la nanoseconde [130, 131, 75]. Ce déphasage rapide masque l'évolution cohérente

1. En revanche, l'expérience de DCP ne permet pas la mesure des termes de cohérence "optique", proportionnels à  $\beta$ .

individuelle du spin de chaque boîte, qui se caractérise par un temps  $T_2$  de plusieurs ordres de grandeurs supérieur à  $T_2^*$  [124].

Les techniques d'écho de spin permettent de contourner le problème posé par l'inhomogénéité [132]. Cependant, ces techniques sont délicates et laborieuses. La méthode du "mode locking", initiée par A. Grelich et coll. [125, 133, 134] sur des boîtes dopées n, est plus simple et plus robuste. De plus elle ne nécessite pas de développement expérimental particulier, elle repose seulement sur l'observation du signal de cohérence aux délais pompe-sonde négatifs.

Le principe est le suivant :

1. Le laser impulsif, fonctionnant en "modes synchronisés", délivre un train d'impulsions séparées d'une période fixe  $T_L$ . Les impulsions, polarisées circulairement, initialisent le spin résident suivant une direction transverse au champ magnétique appliqué. L'ensemble des spins de chaque boîte se mettent à précesser. En raison de la dispersion, le signal de précession de l'ensemble des spins est rapidement amorti bien avant l'arrivée de l'impulsion d'excitation suivante ( $T_2^* < T_L$ ).
2. Si le temps de cohérence  $T_2$  de chaque boîte est supérieur à  $T_L$ , l'oscillation cohérente du spin résident de chaque boîte est préservée, jusqu'à l'arrivée de l'impulsion d'excitation suivante.
3. Dans l'ensemble des boîtes quantiques sondées, il existe des sous-ensembles dont les fréquences de précession  $w_k$  des spins résidents satisfont la condition suivante :

$$w_k = k\Omega, \quad \Omega = 2\pi/T_L, \quad k \in \mathbb{N} \quad (7.9)$$

Cette condition traduit que les spins résidents de ces sous-ensembles réalisent un nombre de tours entier pendant la période  $T_L$  séparant deux impulsions. En conséquence, les spins se retrouvent donc tous alignés, suivant la direction d'initialisation  $z$ , à l'arrivée de l'impulsion suivante (instant  $t = T_L^- \equiv 0^-$ ).

4. Aux délais pompe-sonde négatifs, les familles de spins respectant la condition 7.9 interfèrent donc de manière constructive, et contribuent majoritairement au signal [125]. Bien que  $T_2^* < T_L$ , on observe un retour du signal de cohérence aux délais négatifs. La synchronisation des modes optiques du laser est ainsi transférée au système d'ensemble de spins.

Précisons que l'observation d'un signal de cohérence, aux délais pompe-sonde négatifs, a déjà été reportée sur des électrons résidents, dans des situations expérimentales où  $T_2^* > T_L$  [4, 135]. Cela est un cas clairement différent, qui ne correspond pas au mécanisme de synchronisation.

#### 7.1.4 Expérience

La figure 7.2 présente les résultats de l'expérience de DCP, en configuration pompe-sonde résolue en temps, pour différentes valeurs de champ magnétique appliqué en configuration

Voigt. L'énergie de l'impulsion pompe est résonnante avec celle de l'impulsion sonde, à 1.35 eV. Le faisceau pompe est polarisé circulairement. Les spins photocréés et résidents sont initialisés suivant la direction  $z$  de propagation de la lumière.

Sur les courbes de la figure 7.2, on constate des oscillations du signal de DCP dans notre échantillon. Ces oscillations, dont la fréquence augmente avec l'amplitude du champ  $\vec{B}_x$ , témoignent de l'évolution cohérente de la polarisation de spin en présence du champ magnétique transverse.

Deux régimes d'oscillations sont à distinguer :

- Un premier, pour les délais pompe-sonde inférieurs à 2 ns, où les oscillations sont le reflet de deux contributions : les précessions des spins des électrons photocréés dans l'état trion, et celles des spins des trous résidents. Les oscillations aux temps courts ( $\Delta t \lesssim 2$  ns) sont rapidement amorties, et ce, d'autant plus vite que l'amplitude du champ  $\vec{B}_x$  augmente. L'amortissement provient, d'une part de la recombinaison radiative ( $T_r = 800$  ps) des trions, et d'autre part des dispersions des facteurs de Landé transverses des électrons et des trous ; ces dernières sont responsables de la diminution du temps de cohérence  $T_2^*$  inhomogène avec l'amplitude du champ. Le temps de cohérence inhomogène  $T_2^*$  est de quelques centaines de ps dans la gamme de champ étudiée, donc bien inférieur à la période de répétition du laser  $T_L$ .
- Le second régime que l'on observe, en détail sur les courbes de la figure 7.2(b), s'exprime pour les délais pompe-sonde négatifs. Bien que les oscillations soient moins amples que celles aux délais positifs, le retour du signal de cohérence aux délais négatifs est manifeste. Ce signal est sans ambiguïté associé au spin de l'espèce résidente dans les boîtes quantiques. Le signal observé aux temps négatifs est dû, majoritairement, aux familles de boîtes quantiques respectant la condition de synchronisation (7.9).

La synchronisation est obtenue à la condition que le temps de cohérence homogène  $T_2$  de chaque boîte soit bien supérieur à la période de répétition du laser (13 ns). Cela constitue en soi une première information concernant le temps de cohérence du spin du trou. Un temps de cohérence  $T_2$  long, associé à la répétition des impulsions, nous permet donc d'observer un signal de cohérence dû à une collection de sous-ensembles "quasi homogènes" de boîtes quantiques.

Afin, d'une part, de comprendre plus finement le mécanisme de synchronisation, et d'autre part, d'extraire la valeur du facteur de Landé du trou, nous présentons une modélisation du signal de DCP, que nous confrontons ensuite aux résultats expérimentaux.

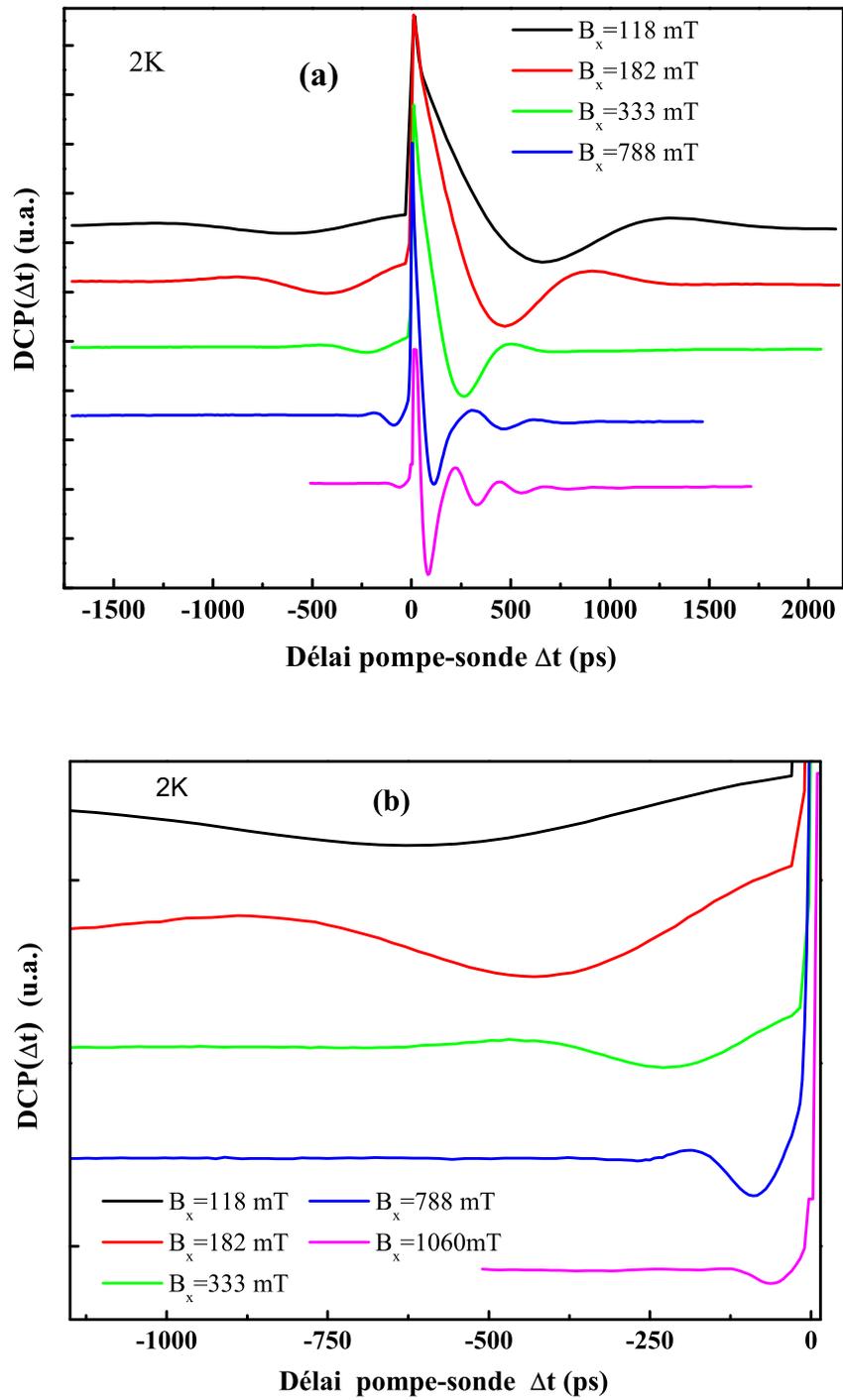


FIGURE 7.2: (a) Courbes de DCP résolues en temps pour différentes valeurs du champ magnétique  $B_x$  appliqué. (b) Agrandissement du signal DCP aux délais pompe-sonde négatifs. Pour clarté, les courbes sont décalées verticalement les unes des autres.

### 7.1.5 Modélisation du signal de cohérence

#### Modèle

Les auteurs des références [130, 136] ont mis en évidence que la polarisation de spin, issue de la recombinaison radiative des trions, peut contribuer au signal de cohérence du spin résident. Ce phénomène porte le nom de cohérence spontanée. Cette cohérence est obtenue si la largeur homogène de la transition fondamentale ( $\sim 1\mu\text{eV}$ ) est supérieure à la séparation d'énergie Zeeman des états excités et fondamentaux ( $\sim 15\mu\text{eV}$  pour  $B_x = 1\text{ T}$ ). Dans la gamme de champ que nous étudions (0.1-1 T), la séparation Zeeman des niveaux d'énergie est comprise entre 1 et  $15\mu\text{eV}$ . On peut donc raisonnablement négliger ce phénomène dans notre cas.

La démarche du calcul est similaire à celle entreprise dans la référence [125] :

- On décrit la polarisation de spin, dans une boîte quantique unique, en considérant la répétition des impulsions et les précessions de spin dans les états excité et fondamental.
- On suppose que la dispersion du facteur de Landé est l'unique source d'inhomogénéité dans l'échantillon de boîtes quantiques.
- On considère ensuite la polarisation de spin d'un ensemble de boîtes quantiques distribué en fonction du facteur de Landé.

La polarisation de spin est décrite dans le formalisme de pseudo-spin (cf. chapitre 4) où les vecteur  $\vec{S}^h$  et  $\vec{S}^e$  représentent, respectivement, les polarisations de spin du trou et du trion. Avec ces considérations, les polarisations de spin dans une boîte quantique évoluent temporellement de la manière suivante :

$$\begin{cases} S_y^e(t) = -S_z^e(0^+) \sin w_e t \exp(-\frac{t}{T_2^e}) \\ S_z^e(t) = S_z^e(0^+) \cos w_e t \exp(-\frac{t}{T_2^e}) \end{cases} \quad \begin{cases} S_y^h(t) = [S_y^h(0^+) \cos w_h t - S_z^h(0^+) \sin w_h t] \exp(-\frac{t}{T_2^h}) \\ S_z^h(t) = [S_z^h(0^+) \cos w_h t + S_y^h(0^+) \sin w_h t] \exp(-\frac{t}{T_2^h}) \end{cases} \quad (7.10)$$

où  $T_2^h$  est le temps de cohérence du trou dans la boîte considérée et  $T_2^e$  celui de l'électron dans l'état trion.  $\vec{S}^h(0^+)$  et  $\vec{S}^e(0^+)$  sont, respectivement, les polarisations de spin du trou et du trion, juste après l'impulsion d'excitation.

A l'instant précédant l'impulsion ( $t = 0^-$ ), seuls les états du trou sont occupés ( $T_L \gg T_R$ ). Les polarisations du système aux instants  $t = 0^+$  et  $t = 0^-$  sont reliées de la manière suivante (cf. chap. 4 et section 7.1.2) :

$$\begin{cases} \vec{S}^e(0^+) = (0, 0, -A[\frac{1}{2} - S_z^h(0^-)]) \\ \vec{S}^h(0^+) = (0, CS_x^h(0^-), \frac{1}{2}(BS_z^h(0^-) + A)) \end{cases} \quad (7.11)$$

avec  $A = \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})$ ,  $B = 1 + \cos^2(\frac{\theta}{2})$ ,  $C = \cos(\frac{\theta}{2})$  et  $\theta$  l'aire d'impulsion.

La solution dans le régime stationnaire, où l'effet de chaque pulse sur le système est le même, est donnée par la condition périodique suivante :

$$\begin{cases} \vec{S}^h(t) = \vec{S}^h(t + T_L) \\ \vec{S}^e(t) = \vec{S}^e(t + T_L) \end{cases} \quad (7.12)$$

Cette condition se traduit au temps  $t = 0^-$  par :  $\vec{S}^h(0^-) = \vec{S}^h(T_L)$ , ( $\vec{S}^e(T_L) = 0$ ). La résolution de cette dernière équation permet de déterminer la dynamique de spin sur une boîte unique.

Les polarisations moyennes de l'ensemble [ $\vec{S}_{moy}^h(t)$ ,  $\vec{S}_{moy}^e(t)$ ] distribuées en fonction des facteurs de Landé, sont données par les intégrations suivantes :

$$\begin{cases} \vec{S}_{moy}^h(t) = \int \vec{S}^h(t) P_h(g_{h,x}) dg_{h,x} \\ \vec{S}_{moy}^e(t) = \int \vec{S}^e(t) P_e(g_{e,x}) dg_{e,x} \end{cases} \quad (7.13)$$

où  $P_h$  et  $P_e$  sont, respectivement, les distributions des facteurs de Landé transverses du trou et de l'électron dans l'état trion. On choisit des distributions de type gaussienne :

$$P_i = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{i,x}} \exp\left[-\frac{(g_{i,x}^{moy} - g_{i,x})^2}{2\sigma_{i,x}^2}\right], \quad i = h, e$$

où  $\sigma_{i,x}$  est la dispersion du facteur de Landé transverse et  $g_{i,x}^{moy}$  sa valeur moyenne sur l'ensemble des boîtes sondées. Précisons que la forme de la distribution influence peu la dynamique de spin sur l'ensemble (une distribution lorentzienne conduit aux mêmes résultats). On rappelle que le signal expérimental de DCP est proportionnel à la quantité  $S_{z,moy}^h - S_{z,moy}^e$ .

### Simulations

La figure 7.3 (b) présente les résultats d'une simulation pour différentes valeurs du champ magnétique transverse. Lorsque l'on compare ces résultats aux courbes expérimentales, on constate que les effets principaux sont reproduits :

- un régime d'oscillations aux temps courts, qui est le reflet de la précession des trions et des trous ;
- un retour du signal aux délais pompe-sonde négatifs qui correspond à la synchronisation des modes de précession des différentes familles de trou.

Les valeurs des paramètres utilisées sont les suivantes :

-  $|g_{e,x}| = 0.38$ , valeur mesurée au LPCNO par le groupe de X. Marie et T. Amand ; la dispersion relative du facteur de Landé  $\left|\frac{\sigma_{e,x}}{g_{e,x}^{moy}}\right|$  est de 0.15, ce qui est proche de la valeur déterminée dans la référence [75], dans des boîtes dopées p d'InAs.

- Le temps de cohérence homogène  $T_2^e$  de l'électron dans l'état trion est principalement limité par le temps de recombinaison radiative. En conséquence, nous considérons :  $T_2^e = T_r$ .

- Le temps de cohérence homogène du trou  $T_2^h$  est ajusté avec une valeur d'une microseconde, ce qui correspond à l'ordre de grandeur du temps de relaxation de spin du trou  $T_1^h$  mesuré dans le chapitre 4. Précisons toutefois que, en raison de la plage temporelle étudiée, les simulations ne permettent pas de déterminer avec précision le temps de cohérence  $T_2^h$ . En effet, une plage de  $T_2^h$  comprise entre 500 ns et 5  $\mu$ s conduit à des ajustements similaires pour les valeurs de champ magnétique étudiées.

- Les valeurs de l'angle de Rabi  $\theta$  sont ajustées à  $0.75\pi$ ,  $0.65\pi$  et  $0.6\pi$  pour, respectivement,

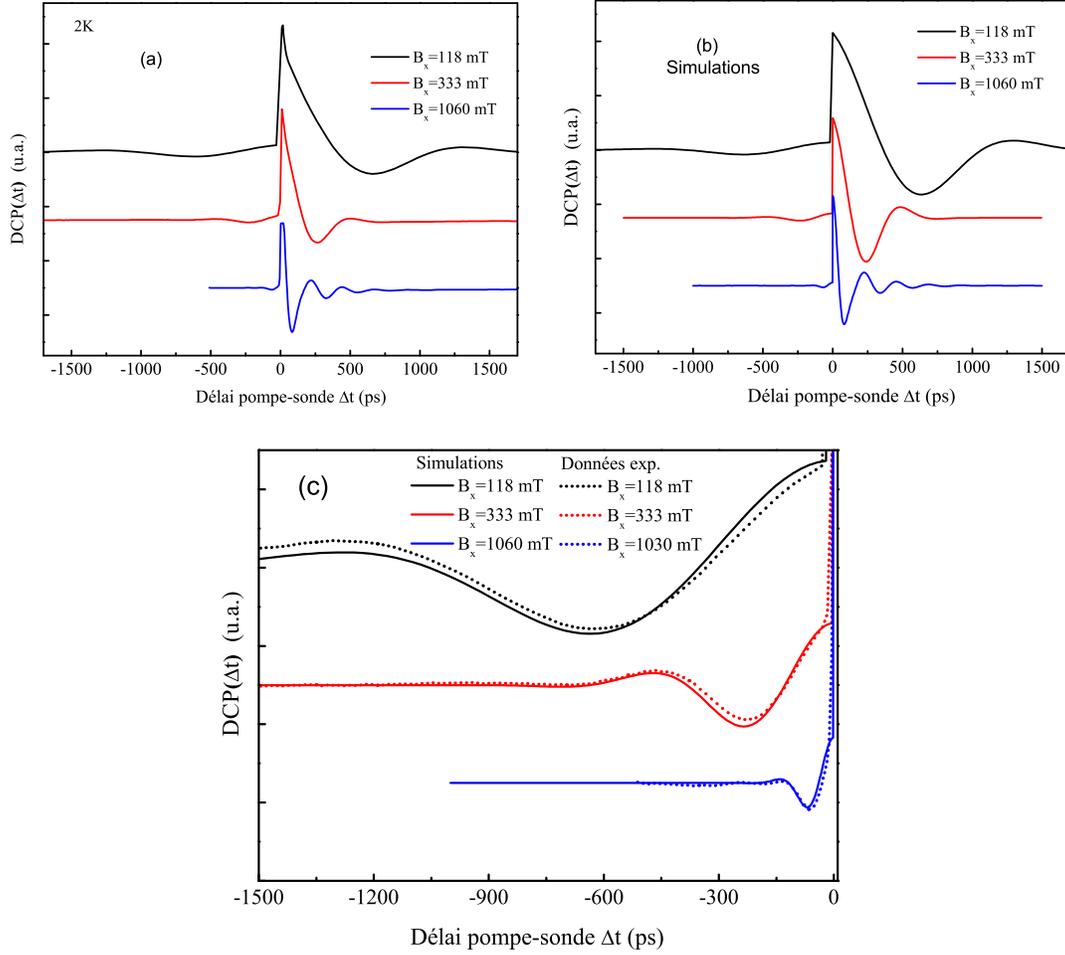


FIGURE 7.3: Courbes de DCP expérimentales (a) et simulées (b). La figure (c) est un agrandissement des courbes expérimentales et simulées aux temps négatifs.  $g_{h,x} = (0.43, 0.42, 0.43)$   $\theta = (0.75\pi, 0.65\pi, 0.6\pi)$  pour respectivement  $B_x = (118, 333, 1060)$  mT. Les paramètres d'ajustement qui sont communs aux trois simulations, sont précisés dans le texte.

$B_x = 118, 333$  et  $1030$  mT. Les courbes expérimentales n'ont pas été obtenues dans des conditions optiques strictement identiques, ce qui explique les différentes valeurs ajustées de l'angle de Rabi.

Afin de déterminer le facteur de Landé  $g_{h,x}$  transverse du trou, une attention particulière est donnée aux simulations pour les délais pompe-sonde négatifs [cf. figure 7.3 (c)]. Les ajustements conduisent à un bon accord avec les courbes expérimentales pour un facteur de Landé moyen  $g_{h,x}^{moy} = 0.43 \pm 0.01$ , avec une dispersion relative  $\left| \frac{\sigma_{g_{h,x}}}{g_{h,x}} \right|$  de 35%.

## Bilan

### Facteur de Landé transverse du trou

La valeur du facteur de Landé transverse moyen du trou que l'on mesure est relativement grande et dispersée. En effet, les expériences de “spin noise” menées par S. Crooker et coll. [137], sur un ensemble de boîtes quantiques d'InAs/GaAs, conduisent à une valeur de 0.05 à 0.2 pour des boîtes présentant une transition fondamentale dont l'énergie est comprise entre 1.40 eV à 1.38 eV. Cependant, plusieurs travaux ont mis en évidence que le facteur de Landé transverse du trou est particulièrement sensible à l'énergie de confinement, à l'anisotropie de forme et aux contraintes [138, 139, 140]. Précisément, les auteurs de la référence [140] montrent qu'une valeur voisine de 0.4 est compatible avec des boîtes présentant une base elliptique, dont le rapport des longueurs entre les directions [110] et  $[1\bar{1}0]$  est voisin de 1.4, et un gap voisin de 1.3 eV. Ceci pourrait être une première indication de la morphologie des boîtes quantiques dans notre échantillon.

### Discrétisation des modes de précession

La figure 7.4 présente le résultat du calcul de la projection du spin du trou  $S_z^h$ , à l'instant  $t = 0^-$  précédant l'impulsion, en fonction du facteur de Landé transverse du trou. Le spectre, quasi discret, résonne pour les familles de spins satisfaisant la condition de synchronisation des phases (CSP) [cf. équation (7.9)]. Cette discrétisation des modes de précession est à l'origine du retour du signal de cohérence de spin des trous aux délais pompe-sonde négatifs [cf. figure (7.2)]. Ajoutons que le retour du signal aux temps négatifs devrait être observable, en théorie, pour des délais pompe-sonde de l'ordre du temps de cohérence homogène  $T_2^h$  [125].

Néanmoins, les modes de précession sont synchronisés avec une certaine largeur, qui diminue avec l'amplitude du champ magnétique appliqué [voir figure (7.4) (a) et (b)]. De plus, en raison de la dispersion importante du facteur de Landé transverse du trou sur l'ensemble des boîtes sondées, le nombre de modes synchronisés est important, et ce, d'autant plus que l'amplitude du champ augmente.

En conséquence, le temps de cohérence inhomogène  $T_2^{h*}$  de l'ensemble des familles synchronisées, est semblable à celui d'une distribution continue de modes de précession [cf. courbe noire des figures 7.4 (a) et (b)] :

$$T_2^{h*} \simeq \hbar / (\mu_B B_x \sigma_{h,x}) \quad (7.14)$$

où  $\sigma_{h,x}$  est la dispersion du facteur de Landé transverse du trou. Ce temps  $T_2^{h*}$  contrôle l'amortissement des oscillations aux délais pompe-sonde positifs et négatifs.

Un autre paramètre déterminant, concernant la synchronisation des modes de précession, est l'aire de l'impulsion d'excitation. La figure 7.4 (a) illustre ce propos :

- Un pulse d'angle de Rabi de  $0.75\pi$  synchronise une grande distribution de boîtes (cf. figure 7.4 (a), courbe verte), celles respectant la CSP mais également celles réalisant un nombre de tours demi-entier entre deux impulsions [ $w_k = (k + \frac{1}{2}) \frac{2\pi}{T_L}$ ]. Cependant le

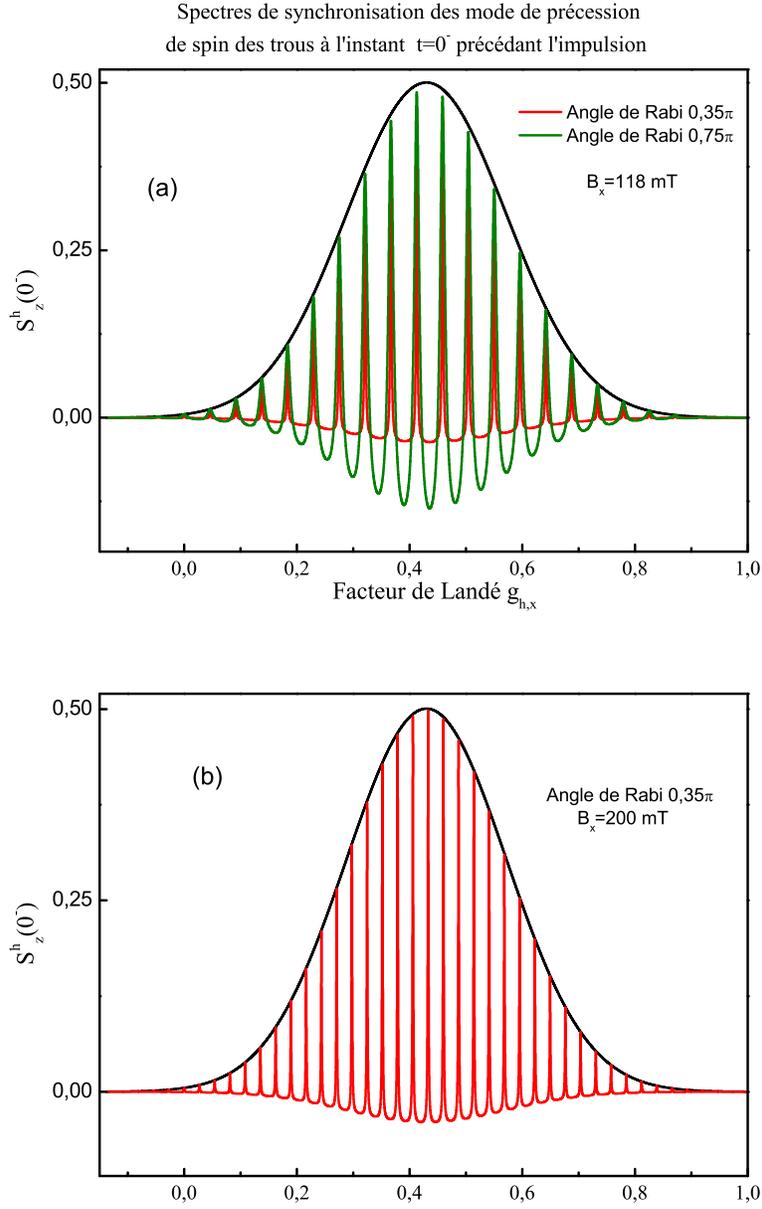


FIGURE 7.4: Polarisation  $S_z^h(0^-)$  de spin du trou, à l'instant précédant l'impulsion d'excitation ( $t = 0^-$ ), en fonction du facteur de Landé transverse  $g_{hx}$ . (a) Pour un champ magnétique  $B_x$  de 118 mT et des aires d'impulsion d'excitation d'angle de Rabi  $0.75\pi$  (courbe verte) et  $0.35\pi$  (courbe rouge). (b) Pour un champ magnétique  $B_x$  de 200 mT et une aire d'impulsion d'excitation d'angle de Rabi  $0.35\pi$ . Les paramètres utilisés sont les suivants :  $T_2^h = 1\mu s$ ,  $|g_{h,x}^{moy}| = 0.43$ ,  $\frac{\sigma_{h,x}}{|g_{h,x}^{moy}|} = 35\%$ . L'enveloppe noire traduit la distribution gaussienne du facteur de Landé.

degré de synchronisation de ces boîtes, dont la projection du spin est opposée à celles satisfaisant la CSP, n'est que d'1/3. Le signal reste majoritairement dû aux familles respectant la CSP.

- Un pulse de Rabi plus faible, par exemple  $0.35\pi$  (cf. figure 7.4 (a), courbe rouge), conduit à un spectre plus étroit où seules les familles respectant la CSP contribuent au signal.

En conclusion, le comportement du signal est donc principalement contrôlé par la dispersion du facteur de Landé et l'angle de Rabi. On comprend ainsi que les ajustements ne peuvent prétendre à déterminer précisément la valeur du  $T_2^h$  et son évolution avec le champ magnétique. Une plage de  $T_2^h$  comprise entre 500 ns et 5  $\mu$ s conduit à des ajustements satisfaisants pour les valeurs de champ magnétique étudiées. Précisons toutefois que notre mesure permet d'estimer le temps de cohérence homogène moyen des boîtes synchronisées. Cependant, ce résultat est cohérent avec les observations expérimentales des auteurs des références [141, 128]. En effet, Degreeve et coll. et Brunner et coll. estiment un temps de cohérence  $T_2^h$  de spin du trou de l'ordre de la microseconde sur une boîte unique pour, respectivement, des champs magnétiques de 8 T et 2T. En revanche, concernant le mécanisme de décohérence, les explications divergent, et la démonstration claire d'un mécanisme dominant n'a pas été apportée.

## 7.2 Expérience à deux impulsions, écho du signal de cohérence

Dans la partie précédente, nous avons mis en évidence que le train d'impulsions, associé à un champ magnétique transverse, conduit à l'observation d'un signal de cohérence de spin des trous induit par des familles particulières de boîtes quantiques spectralement<sup>2</sup> sélectionnées. Nous nous intéressons, ici, au degré de contrôle que l'on peut opérer sur le signal de cohérence de spin des trous. A cette fin, nous avons modifié le protocole d'excitation de la manière suivante : chaque impulsion pompe est séparée en deux impulsions de même polarisation et de même intensité, le délai  $T_D$  entre les deux impulsions pompe est accordable à l'aide d'une ligne à retard mécanique. Le détail du schéma expérimental est présenté au chapitre 2.

La figure 7.5 présente les résultats de l'expérience de DCP pour deux impulsions d'excitation séparées de  $T_D = 1.39$  ns (courbe bleue). Le champ magnétique, appliqué en configuration Voigt, a une amplitude de 333 mT. On constate qu'il apparaît trois régimes d'oscillations de spin des trous :

- Un premier qui précède le passage de la première impulsion (ce qui est similaire à l'expérience à une impulsion).

---

2. Le mot spectral est employé ici du point de vue de la fréquence de précession (énergie Zeeman) du spin du trou dans une boîte quantique.

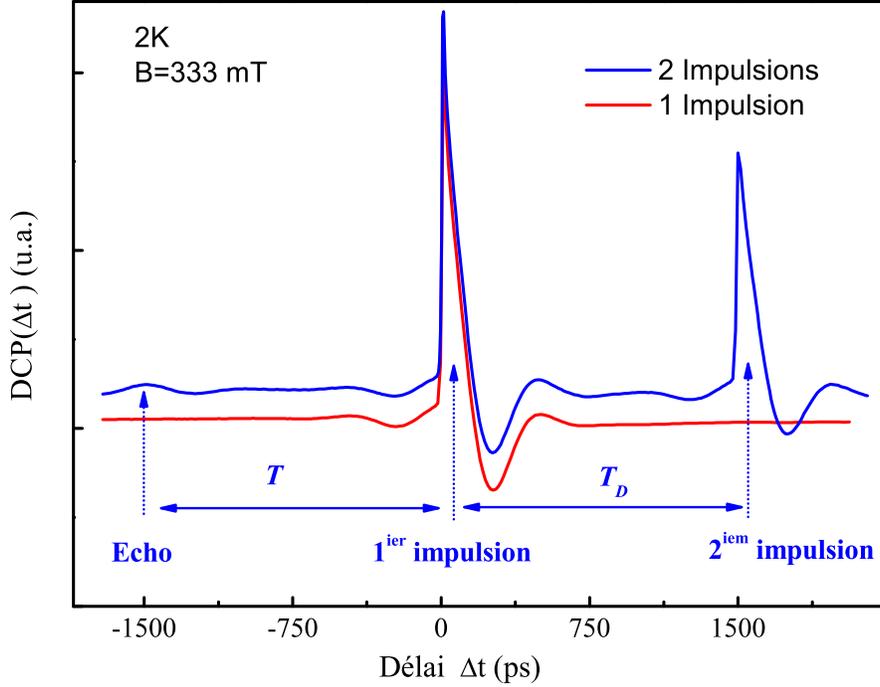


FIGURE 7.5: Signal de DCP résolu en temps pour un champ magnétique  $B_x = 333 \text{ mT}$ . La courbe en bleu (rouge) correspond à l'expérience réalisée avec un protocole d'excitation à deux impulsions (à une impulsion). Le délai temporel  $T_D$  entre les deux impulsions d'excitation est fixé à  $1.39 \text{ ns}$ .

- Un second qui précède le passage de la deuxième impulsion, que l'on attribue aux trous car  $T_D > T_R > T_2^{e*}$ .
- Un troisième qui débute à un délai temporel égal à la séparation des deux impulsions. Ce dernier régime correspond à un écho de la seconde impulsion. On peut le comprendre ainsi : les boîtes quantiques qui participent au signal sont synchronisées par les deux impulsions pompe. Les fréquences de Larmor des trous résidents en question doivent donc satisfaire aux deux conditions suivantes :

$$w_h = 2\pi k/T_D, k \in \mathbb{N} \quad (7.15)$$

$$w_h = 2\pi p/(T_L - T_D), p \in \mathbb{N} \quad (7.16)$$

Les équations (7.15) et (7.16) entraînent que les différents spins se trouvent en phase aux instants qui sont un multiple de  $T_D$  et de  $(T_L - T_D)$ . En conséquence, on observe un retour du signal de cohérence de spin des trous aux temps négatifs de la première et de la seconde impulsion, ainsi qu'aux délais pompe-sonde voisins de  $-T_D$ . La synchronisation à deux impulsions nous permet donc de distribuer temporellement le signal de précession des trous, et d'observer ainsi un plus grand nombre d'oscillations dans notre fenêtre temporelle.

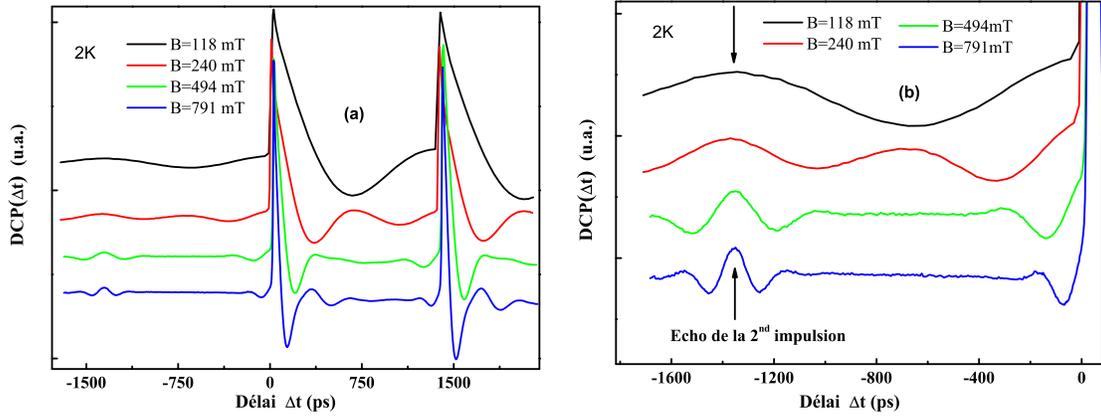


FIGURE 7.6: (a) Expériences de DCP à deux impulsions pompe pour différentes valeurs du champ magnétique. La figure (b) est un agrandissement aux délais pompe-sonde négatifs.

Les courbes de la figure 7.6, réalisées en fonction du champ magnétique, permettent d'appuyer ce dernier point. On constate, pour  $B_x = 118$  et  $240$  mT, un régime d'oscillations complet entre l'écho de la seconde impulsion ( $-T_D$ ) et l'instant précédant la première impulsion [cf. figure 7.6 (b)]. La condition de synchronisation (7.15) impose que les spins des trous réalisent un nombre de tours entiers dans un intervalle de temps égale à  $T_D$ . Pour  $B_x = 118$  mT et  $B_x = 240$  mT, seule la famille de boîtes quantiques possédant un facteur de Landé  $g_{h,x} = 0.43$  satisfait la condition (7.15) : les spins des trous réalisent un et deux tours entiers pour, respectivement,  $B_x = 118$  mT et  $B_x = 240$  mT.

De plus, pour ces faibles valeurs de champ magnétique, le temps de déphasage inhomogène  $T_2^{h*}$  est relativement long :  $T_2^{h*} \simeq \hbar / (\mu_B B_x \sigma_{h,x}) \simeq 2$  ns. Le signal est donc faiblement amorti, ce qui permet d'observer pleinement les oscillations aux temps négatifs.

En revanche, pour des valeurs de champ plus élevées, 493 mT et 791 mT [cf. figure 7.6 (b)], le temps  $T_2^{h*}$  est plus court, et le signal est rapidement amorti de part et d'autre de l'écho et de la première impulsion.

En conclusion, cette dernière expérience, permet de mettre en évidence : (i) l'initialisation de la cohérence par une impulsion, (ii) le contrôle par une seconde et (iii) la lecture par une troisième (sonde). Cela constitue les trois ingrédients de la manipulation cohérente d'un système.

### 7.3 Conclusion et perspectives

Nous avons montré, dans ce chapitre, que le signal de cohérence d'un ensemble de trous résidents est observable au-delà du temps de déphasage inhomogène. Cette observation est rendue possible grâce à la synchronisation des modes de précession de spin des trous par le train d'impulsions pompe. La synchronisation nous a permis de mettre en évidence, d'une part, que le temps de cohérence homogène de spin du trou est au moins d'un ordre de gran-

deur supérieur à la période de répétition du laser, et d'autre part, que le facteur transverse de Landé moyen du trou dans notre échantillon est de 0.43. Précisons à ce sujet que cette valeur plutôt élevée du facteur Landé permet au système d'être contrôlé par des champs extérieurs relativement modestes, ce qui présente un avantage certain. A l'avenir, une mesure du facteur de Landé du trou, en fonction de l'énergie des boîtes et de la direction dans le plan de croissance, pourrait apporter des éléments de réponse plus précis concernant la morphologie des boîtes quantiques dans notre échantillon.

Les expériences à deux impulsions d'excitation ont démontré la possibilité de distribuer temporellement l'évolution cohérente d'un ensemble de spins. De plus, la condition de synchronisation des phases à deux impulsions étant plus restrictive qu'à une seule impulsion, la sélection spectrale sur l'ensemble des boîtes est plus efficace. Dans ces conditions, le signal de cohérence de spin des trous est induit par des sous-familles de boîtes quantiques quasiment homogènes.

En revanche, nous n'avons pu estimer précisément le temps cohérence homogène du trou et son évolution avec le champ magnétique appliqué. En outre, nous avons mis en évidence au chapitre 5, les rôles : de l'interaction hyperfine, de l'interaction trou-phonon et de l'environnement électrostatique (plans d'accepteurs), en fonction de la température et du champ magnétique, sur le temps de relaxation  $T_1^h$  de spin du trou. Il est donc naturel de s'interroger sur les rôles de ces mécanismes concernant la relaxation de la phase. Des expériences, résolues en fréquence, analogues à celles présentées dans le chapitre 5, pourraient permettre d'étudier la dynamique de l'évolution cohérente de spin des trous sur une plus grande échelle de temps, et de déterminer ainsi, plus précisément, l'évolution du temps de cohérence  $T_2^h$  en fonction du champ magnétique et de la température.

Concluons sur le fait que l'observation franche d'un signal de cohérence de spin des trous ouvre la voie à des manipulations quantiques fines comme, par exemple, le contrôle cohérent d'un qubit de spin de trou par effet Stark optique.



# Conclusion

Ce travail de thèse, essentiellement basé sur des expériences pompe-sonde en configuration de dichroïsme circulaire résolu en temps et en polarisation, a porté sur l'étude de la dynamique de spin du trou dans un ensemble de boîtes quantiques d'InAs dopée p. Différents volets des propriétés de spin du trou ont été étudiés, expérimentalement et à l'aide de modélisations.

Les principaux résultats obtenus et exposés dans ce manuscrit sont résumés ci-dessous :

La mise en œuvre d'une expérience pompe-sonde à deux couleurs a permis de mettre en évidence que l'orientation optique de spin du trou résident peut être obtenue sous pompage résonnant et non résonnant. Sous excitation résonnante, deux contributions de signes opposés participent à la polarisation de spin résidente. Celle provenant de l'émission spontanée du trion, ainsi que celle issue de l'absorption résonnante de l'impulsion (contribution stimulée). La polarisation de spin résidente perdure au-delà du temps de vie radiatif des trions, en raison de l'interaction hyperfine de l'électron dans l'état trion qui limite ainsi la contribution spontanée. Dans le cas non résonnant, la polarisation de spin du trou est rendue possible grâce à la dépolarisation efficace du spin du trou photocréé dans la couche de mouillage. La polarisation de spin résidente est uniquement induite par l'émission spontanée du trion. Ce mécanisme conduit à une polarisation de spin résidente d'orientation moyenne opposée à celle du trou photocréé. Finalement, le choix de l'énergie d'excitation permet d'orienter la polarisation de spin résidente, indépendamment de celle du trion photocréé (chapitre 4). Il a été établi en 2009 que l'interaction hyperfine trou-noyaux est le mécanisme dominant la relaxation de spin du trou à basse température et sans champ magnétique appliqué. Cette relaxation provient des termes transverses du couplage hyperfin, qui sont induits par le mélange des états de valence lourds et légers. Les modélisations du comportement temporel, sur 13 ns, des polarisations de spin du trou et du trion sous excitation résonnante et non résonnante ont permis d'appuyer les interprétations expérimentales des mécanismes de polarisation et de relaxation de spin.

Dans le chapitre 5, nous nous sommes consacrés à l'étude de la dynamique de spin du trou résident sur une échelle de temps bien supérieure à la dizaine de nanosecondes. Cette étude a été rendue possible grâce à une approche expérimentale originale basée sur la résolution fréquentielle du signal de dichroïsme circulaire photoinduit.

Le mécanisme de relaxation hyperfine s'est révélé être multi-échelle : dans un premier temps, il se manifeste de manière partielle sur une dizaine de nanosecondes ; il s'affirme ensuite sur une échelle de temps bien plus longue de l'ordre de la micro-seconde. Cette seconde échelle de temps est liée à la dynamique interne des spins nucléaires, associée au caractère inhomogène de la fonction d'onde du trou.

Le couplage hyperfin pouvant être inhibé par un champ de quelques mT, nous avons également étudié la nature des mécanismes de relaxation de spin du trou lorsque l'interaction hyperfine est écrantée. Des études sous champ magnétique et à température variable ont permis de révéler que la relaxation de spin du trou est contrôlée par l'interaction trou-phonon au deuxième ordre, et ce, à faible champ magnétique et pour une température supérieure à 15 K. Ce résultat constitue la première mise en évidence expérimentale de ce mécanisme dans les boîtes quantiques.

L'existence d'un couplage hyperfin trou-noyaux tridimensionnel ayant été établie, s'est alors posée la question de la possibilité de polariser les spins nucléaires via cette interaction. Nous avons démontré, dans le chapitre 6, que notre technique pompe-sonde permet d'étudier les effets nucléaires sur un ensemble de boîtes quantiques. A travers le terme longitudinal de l'interaction hyperfine trou-noyaux, nous avons mesuré le champ Overhauser exercé sur le spin résident du trou. Nous avons ainsi mis en évidence que, sous excitation pulsée résonnante, le trou induit majoritairement la polarisation dynamique nucléaire, dans notre échantillon de boîtes quantiques dopées p. Le niveau de polarisation  $\sim 0,5\%$  atteint ne fait certes pas du trou un candidat particulièrement prometteur pour manipuler le spin des noyaux. Cependant, l'observation d'une polarisation des noyaux induite par le trou renforce la nécessité de prendre en compte, dans toute interprétation future, l'interaction hyperfine subie par le trou. Cette dernière ayant une influence non seulement sur la dynamique de spin du trou, mais également sur celle des noyaux.

Les derniers résultats de ce mémoire (chapitre 7) portent sur la manipulation cohérente du spin du trou. Nous avons montré que le signal de cohérence d'un ensemble de trous résidents est observable au-delà du temps de déphasage inhomogène. Cette observation est rendue possible grâce à la sélection fréquentielle des modes de précession des spins de trou par le train d'impulsions pompe. Dans ces conditions, le signal de cohérence de spin des trous est induit par des sous-familles de boîtes quantiques quasiment homogènes. Le développement d'une expérience basée sur un protocole d'excitation à deux impulsions, a démontré la possibilité de distribuer temporellement l'évolution cohérente d'un ensemble de spins. En revanche, nous n'avons pu estimer précisément le temps de cohérence homogène du trou et son évolution avec le champ magnétique appliqué. Néanmoins, les simulations réalisées

---

indiquent qu'une valeur d'au moins 500 ns semble être un minimum dans notre échantillon. Ce dernier point est particulièrement prometteur. D'une part, il ouvre la possibilité d'étudier le signal de cohérence sur une échelle de temps longue, et de pouvoir ainsi déterminer précisément le temps de cohérence et les mécanismes contrôlant la relaxation de la phase. D'autre part, l'observation franche d'un signal de cohérence de spin des trous ouvre la voie de manipulations quantiques audacieuses comme, par exemple, le contrôle cohérent d'un qubit de spin de trou par effet Stark optique.

Toutes les études présentées ici ont été réalisées sur un ensemble de boîtes quantiques. Afin de s'affranchir des effets d'inhomogénéité, il apparaît indispensable d'évoluer vers l'étude de spins uniques. Pour atteindre cet objectif, une option est d'insérer les boîtes quantiques dans une microcavité. Ceci devrait permettre d'exalter le signal pompe-sonde de dichroïsme [142, 143]. Des expériences très intéressantes pourraient être alors envisagées. On peut imaginer, par exemple en configuration Voigt, que l'association de la sélection fréquentielle des boîtes, opérée par le train d'impulsion, et de la sélection spectrale imposée par la cavité, conduise à manipuler un ensemble de boîtes extrêmement homogène. Ainsi, l'association d'un temps de cohérence long et d'un signal fort détectable, pourrait se révéler être une alternative très intéressante par rapport à l'étude d'une boîte unique.



## Annexe A

# Dynamique du système électron-noyaux en interaction hyperfine, méthode exacte

Nous présentons ici un modèle permettant de calculer la dynamique de spin du système électron-noyaux soumis à l'interaction hyperfine dans une boîte quantique [144, 57, 145]. Cette annexe est en relation avec le chapitre 3.

### Hypothèses

Le modèle proposé par G. G. Kozlov [57] est basé sur la résolution exacte de l'hamiltonien hyperfin. Les hypothèses de départ sont les suivantes :

- Les noyaux sont supposés de spin 1/2 et de même espèce.
- La fonction d'onde électronique est constante ( $|\Phi(\vec{r})|^2 = \text{cst}$ ). En conséquence le couplage hyperfin est homogène tout point de l'espace intérieur à la boîte quantique.
- L'effet Zemman sur les noyaux est négligé devant celui du porteur de spin électronique.

Compte tenu de ces hypothèses, le hamiltonien hyperfin en présence d'un champ  $B_z$  appliqué se simplifie de la manière suivante :

$$H = \hbar\omega S_z + A_{\parallel} S_z I_z + A_{\perp} (S_+ I_- + S_- I_+) \text{ avec } \hbar\omega = \mu_B g_e B_z \quad (\text{A.1})$$

où  $\vec{I} = \sum_j \vec{I}^j$  est l'opérateur de spin nucléaire total,  $A_{\parallel}$  et  $A_{\perp}$  sont les constantes de couplage homogène suivant  $z$  et  $(x,y)$  respectivement,  $A_{\parallel} = \text{cst}$ . Dans le cas de l'électron de conduction, le couplage est isotrope :  $A_{\perp} = \frac{A_{\parallel}}{2}$ . En revanche, pour le cas du trou, l'hamiltonien est anisotrope :  $A_{\perp} = \alpha \frac{A_{\parallel}}{2}$  ( $\alpha < 1$ , cf. chapitre 3).

### Base des états

Les systèmes électronique et nucléaire sont quantifiés. Le hamiltonien dépend du moment cinétique de spin nucléaire total du système. Il est donc

commode de décrire le système nucléaire dans une base propre des opérateurs  $I^2$  et  $I_z$  :  $|J, L\rangle$  où  $J$  est le nombre quantique relatif au moment nucléaire total tel que  $\langle I^2 \rangle = J(J+1)$ , et  $L$  la projection du moment total suivant  $z$ . La base décrit le système complet électron-noyaux lorsqu'on y ajoute les états du spin électronique, par le produit tensoriel suivant :

$$\{|S_z\rangle \otimes |J, L\rangle \equiv |S_z, J, L\rangle\} \quad (\text{A.2})$$

où  $S_z = \pm\frac{1}{2}$ ,  $L = J, J-1, \dots, -J$ , et  $J = 0, 1, \dots, \frac{N}{2}$  (avec un nombre  $N$  de noyaux pair).

### Hamiltonien diagonal par blocs

Un état quelconque du système est couplé, à travers le Hamiltonien A.1, à un seul autre état de même moment nucléaire total  $J$  :

$$|-\frac{1}{2}, J, L\rangle \leftrightarrow |\frac{1}{2}, J, L-1\rangle \quad (\text{A.3})$$

Les éléments de matrice du couplage hyperfin sont donnés par :

$$\langle -\frac{1}{2}, J, L | A_{\perp} S_{-} I_{+} | \frac{1}{2}, J, L-1 \rangle = \langle \frac{1}{2}, J, L-1 | A_{\perp} S_{+} I_{-} | -\frac{1}{2}, J, L \rangle \quad (\text{A.4})$$

$$= A_{\perp} \sqrt{J(J+1) - L(L-1)} \quad (\text{A.5})$$

Ces dernières considérations permettent d'obtenir une représentation matricielle diagonale par blocs de  $H$ . En effet, pour un moment total  $J$  donné, et en ordonnant la base des états de la manière suivante :

$$|\frac{1}{2}, J, J\rangle, |-\frac{1}{2}, J, J\rangle, |\frac{1}{2}, J, J-1\rangle, \dots, |-\frac{1}{2}, J, 1-J\rangle, |\frac{1}{2}, J, -J\rangle, |-\frac{1}{2}, J, -J\rangle \quad (\text{A.6})$$

on déduit que  $H$  est composée de sous-matrices  $H_J$  indépendantes et de moment total  $J$ , où chaque  $H_J$  est construite à partir de blocs à deux dimensions  $H_{JL}$  (les états sont seulement couplés deux à deux). La dimension de  $H_J$  est  $2(2J+1)$ .

Un bloc élémentaire  $H_{JL}$  s'écrit, dans le sous-espace  $\{|-\frac{1}{2}, J, L\rangle, |\frac{1}{2}, J, L-1\rangle\}$ , de la manière suivante :

$$H_{JL} = \begin{bmatrix} -(\hbar\omega + A_{\parallel}L)/2 & A_{\perp} \sqrt{J(J+1) - L(L-1)} \\ A_{\perp} \sqrt{J(J+1) - L(L-1)} & (\hbar\omega + A_{\parallel}(L-1))/2 \end{bmatrix}_{(|-\frac{1}{2}, J, L\rangle, |\frac{1}{2}, J, L-1\rangle)} \quad (\text{A.7})$$

où  $L = J, J-1, \dots, 1-J$ . Précisons que les états  $|\frac{1}{2}, J, J\rangle$  et  $|-\frac{1}{2}, J, -J\rangle$  sont des états propres du hamiltonien  $H$ . Ils constituent les blocs terminaux de  $H_J$ , avec pour éléments de matrice :  $H_{J,ini} = (\hbar\omega + A_{\parallel}J)/2$  et  $H_{J,fin} = -(\hbar\omega + A_{\parallel}J)/2$ .



À l'instant initial  $t = 0$ , les matrices  $\rho_n$  et  $\rho_e$  étant diagonales, l'évolution hamiltonienne de  $\rho$  conduit donc à une structure matricielle identique à celle du hamiltonien  $H$  : diagonale par blocs  $\rho_{JL}$ .

### *Dynamique*

Les considérations précédentes permettent de calculer la dynamique du système entre deux impulsions. Les matrices  $H$  et  $\rho$  étant toutes deux diagonales par blocs, le problème se résume à traiter l'évolution des sous-systèmes élémentaires à deux dimensions :

$$i\hbar\dot{\rho}_{JL} = [H_{JL}, \rho_{JL}] \quad (\text{A.11})$$

On considère la répétition des impulsions à travers la condition périodique suivante :

$$\rho_{JL}(T_m) = \rho_{JL}(T_{m+1}) \quad (\text{A.12})$$

Ce problème à deux niveaux se résout analytiquement. Une fois  $\rho_{JL}(t)$  déterminée, on construit alors le bloc de moment  $J$  :  $\rho_J(t)$ . On déduit ensuite les observables nucléaire et électronique de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \langle S_z(t) \rangle &= \sum_{j=0}^{N/2} \Gamma(J) \text{Tr}[\rho_J(t) S_z] \\ \langle I_z(t) \rangle &= \sum_{j=0}^{N/2} \Gamma(J) \text{Tr}[\rho_J(t) I_z] \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

où  $\Gamma(J)$  est la multiplicité des blocs  $\rho_J$ . Précisons que, hormis le cas présenté dans le chapitre 3 ( $B_z = 0$ ), les solutions sont numériques et le temps de calcul dépend du nombre de noyaux considérés.

### **Remarque**

Si l'on veut considérer de manière finie la dispersion de la fonction d'onde électronique, on introduit un nombre  $k$  de constantes  $A_k$  de couplage hyperfin différentes [145]. Le hamiltonien perd alors la structure élémentaire précédente. Cependant si le nombre  $k$  de couplages différents reste modeste, des réductions par blocs sont encore possibles, et des algorithmes particuliers [146, 147] permettent de diagonaliser  $H$  en un temps raisonnable [145].

### **Lois d'échelles**

Les simulations sont effectuées avec un nombre  $N_{simu}$  de noyaux. Pour faire correspondre les simulations au cas réaliste d'une boîte quantique contenant un nombre  $N_{réel}$  de noyaux, il convient de normaliser les résultats obtenus.

### *Énergie*

Avec une densité électronique moyenne dans une boîte quantique de  $|\widetilde{\Phi}|^2 = \frac{2}{\nu_0 N}$ , la constante hyperfine homogène moyenne est  $A_{\parallel} = A^e |\widetilde{\Phi}|^2 \nu_0 = \frac{2A^e}{N}$ . L'échelle d'énergie est donc  $\varepsilon = N_{réel}/N_{simu}$ . Par exemple, lorsque l'on simule l'évolution du système en présence d'un champ

---

magnétique appliqué, cela revient à multiplier l'amplitude de celui-ci par le facteur  $\epsilon$ .

### *Temps*

On a vu au chapitre 3 que le temps caractéristique  $T_{\Delta,1}$ , de la dynamique de la polarisation de spin induite par l'interaction hyperfine, est donné par  $T_{\Delta,1} \propto \sqrt{N}$ . Pour correspondre à un cas réaliste, l'échelle de temps simulée doit être multipliée par  $\sqrt{N_{réel}/N_{simu}}$ .



## Annexe B

# Reconstruction partielle de la dynamique temporelle

Cette partie complète les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 5. Le comportement temporel de la dynamique “longue” du trou peut être reconstruit partiellement. L’analyse fréquentielle permet de détecter le module et la phase de la composante de Fourier choisie du signal  $S(t)$ . On rappelle que  $S(t)$  est une fonction périodique ( $T_m = 2\pi/\omega_m$ ) décomposable en série :

$$S(t) = A(\epsilon) \sum_{n=0}^{+\infty} a_n \cos(n\omega_m t + \varphi_n)$$

Expérimentalement, seuls les sept premières harmoniques  $(a_n, \varphi_n)_{n=1-7}$  sont accessibles avec les détections synchrones dont nous disposons. Pour une fréquence de modulation donnée, la somme des sept premières harmoniques permet de reconstruire partiellement le comportement temporel de la dynamique aux temps longs ( $S_7$ ).

La figure B.1 présente les résultats de cette expérience pour une fréquence de modulation de 50 kHz avec un rapport cyclique de 50 %. L’allure temporelle de la polarisation, construite avec seulement sept harmoniques, ne permet pas d’extraire les temps caractéristiques sans simulation. Il nous faut, là aussi, supposer un comportement particulier (déclin et montée exponentielle) pour la dynamique de polarisation de spin du trou, simuler cette dynamique avec sept harmoniques, et enfin la confronter aux données expérimentales.

Sur la figure B.1 la courbe expérimentale de la polarisation temporelle est représentée en rouge, la simulation en bleue. L’ajustement permet d’extraire un  $T_1$  de 850 ns et un  $\tau_i$  de 440 ns. Les temps extraits sont cohérents avec ceux obtenus par la méthode du chapitre 5. De plus l’expérience, réalisée à une fréquence fixe de modulation, ne requiert que sept mesures (une mesure pour chaque harmonique), ce qui présente un avantage au niveau du temps d’acquisition expérimental. En effet dans la configuration présentée au chapitre 5 l’acquisition est réalisée dans une gamme fréquentielle allant de 1 à 100 kHz avec un pas de 1kHz, ce qui correspond à 100 mesures. Cependant, la précision, concernant les temps caractéristiques extraits, demeure plus faible que dans la configuration présentée au cha-

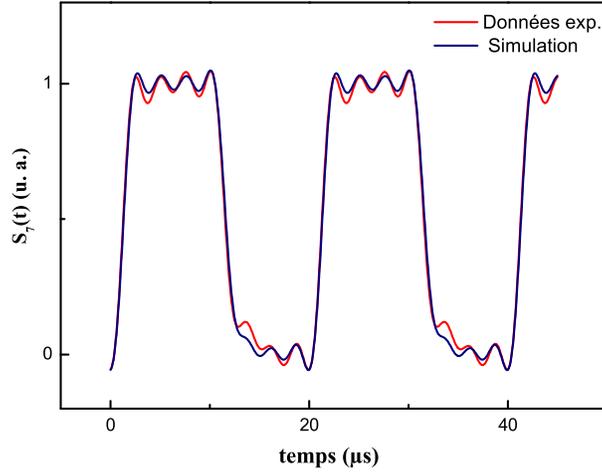


FIGURE B.1: *Reconstruction temporelle du signal expérimental de DCP (courbe rouge) et simulé (courbe bleue) contenant les sept premières harmoniques,  $S_7$ . La fréquence de modulation est de 50 kHz le rapport cyclique de 50% ( $T_c = T_s = 10 \mu s$ ). L'ajustement est obtenu avec  $T_1 = 850 ns$  et  $\tau_i = 440 ns$ .*

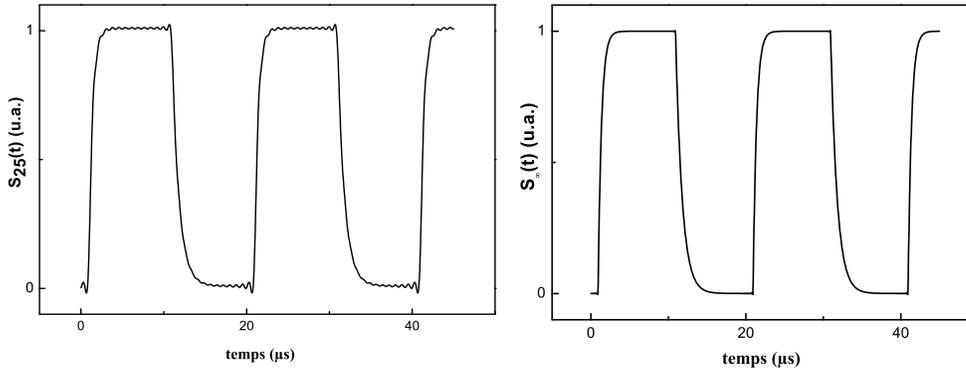


FIGURE B.2: *Simulation du comportement temporel du signal de DCP contenant (a) 25 harmoniques  $S_{25}$  et (b) une infinité  $S_\infty$ . Les simulations sont réalisées avec  $\tau_i = 0.5 \mu s$  et  $T_1 = 1 \mu s$ .*

pitre 5. Ceci est dû au nombre réduit d'harmoniques détectés. En effet, avec une détection synchrone permettant d'extraire une vingtaine d'harmoniques le comportement temporel pourrait être reconstruit de manière fiable (voir B.2). Cela permettrait, de plus, d'obtenir des informations sur la dynamique sans avoir à postuler, préalablement, un comportement temporel particulier.

# Bibliographie

- [1] Khaetskii, A. V., and Nazarov, Y. V. (2000) Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B* *61*, 12639–12642.
- [2] Kavokin, K. V. (2001) Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors. *Physical Review B* *64*, 075305+.
- [3] Merkulov, I. A., Efros, A. L., and Rosen, M. (2002) Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Physical Review B* *65*, 205309+.
- [4] Kikkawa, J. M., and Awschalom, D. D. (1998) Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs. *Physical Review Letters* *80*, 4313–4316.
- [5] Paillard, M., Marie, X., Renucci, P., Amand, T., Jbeli, A., and Gérard, J. M. (2001) Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters* *86*, 1634–1637.
- [6] Dzhioev, R. I., Kavokin, K. V., Korenev, V. L., Lazarev, M. V., Ya., Stepanova, M. N., Zakharchenya, B. P., Gammon, D., and Katzer, D. S. (2002) Low-temperature spin relaxation in n type GaAs. *Physical Review B* *66*, 245204+.
- [7] Meier, F., and Zakharchenya, B. P. *Optical orientation* ; elsvier, 1984.
- [8] Khaetskii, A., Loss, D., and Glazman, L. (2003) Electron spin evolution induced by interaction with nuclei in a quantum dot. *Physical Review B* *67*, 195329+.
- [9] Erlingsson, S. I., and Nazarov, Y. V. (2004) Evolution of localized electron spin in a nuclear spin environment. *Physical Review B* *70*, 205327+.
- [10] Braun, P. F., Marie, X., Lombez, L., Urbaszek, B., Amand, T., Renucci, P., Kalevich, V., Kavokin, K., Krebs, O., Voisin, P., and Masumoto, Y. (2005) Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots. *Physical Review Letters* *94*.
- [11] Dou, X. M., Sun, B. Q., Jiang, D. S., Ni, H. Q., and Niu, Z. C. (2011) Electron spin relaxation in a single InAs quantum dot measured by tunable nuclear spins. *Physical Review B* *84*, 033302+.

- [12] Gerardot, B. D., Brunner, D., Dalgarno, P. A., Ohberg, P., Seidl, S., Kroner, M., Karrai, K., Stoltz, N. G., Petroff, P. M., and Warburton, R. J. (2008) Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot. *Nature* *451*, 441–444.
- [13] Eble, B., Testelin, C., Desfonds, P., Bernardot, F., Balocchi, A., Amand, T., Miard, A., Lemaitre, A., Marie, X., and Chamarro, M. (2009) Hole–Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots. *Physical Review Letters* *102*, 146601+.
- [14] Zhang, W., Konstantinidis, N., Al-Hassanieh, K. A., and Dobrovitski, V. V. (2007) Modelling decoherence in quantum spin systems. *Journal of Physics : Condensed Matter* *19*, 083202+.
- [15] Chen, G., Bergman, D. L., and Balents, L. (2007) Semiclassical dynamics and long-time asymptotics of the central-spin problem in a quantum dot. *Physical Review B* *76*, 045312+.
- [16] Eble, B., Krebs, O., Lemaitre, A., Kowalik, K., Kudelski, A., Voisin, P., Urbaszek, B., Marie, X., and Amand, T. (2006) Dynamic nuclear polarization of a single charge-tunable InAs/GaAs quantum dot. *Physical Review B* *74*, 081306+.
- [17] Lai, C. W., Maletinsky, P., Badolato, A., and Imamoglu, A. (2006) Knight-Field-Enabled Nuclear Spin Polarization in Single Quantum Dots. *Physical Review Letters* *96*, 167403+.
- [18] Greilich, A., Shabaev, A., Yakovlev, D. R., Efros, A., Yugova, I. A., Reuter, D., Wieck, A. D., and Bayer, M. (2007) Nuclei-Induced Frequency Focusing of Electron Spin Coherence. *Science* *317*, 1896–1899.
- [19] Goldstein, L., Glas, F., Marzin, J. Y., Charasse, M. N., and Le Roux, G. (1985) Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters* *47*, 1099–1101.
- [20] Moison, J. M., Houzay, F., Barthe, F., Leprince, L., André, E., and Vatel, O. (1994) Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs. *Applied Physics Letters* *64*, 196–198.
- [21] Yu, P. Y., and Cardona, M. *Fundamentals of semiconductors : physics and materials properties* ; Springer, 1999.
- [22] Bardeen, J. (1938) An Improved Calculation of the Energies of Metallic Li and Na. *The Journal of Chemical Physics* *6*, 367–371.
- [23] Seitz, F. *The modern theory of solids* ; Dover Publications, 1987 (First edition 1940).
- [24] Luttinger, J. M. (1956) Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors : General Theory. *Physical Review Online Archive (Prola)* *102*, 1030–1041.

- 
- [25] Fishman, G. *Semi-conducteurs : les bases de la théorie  $k.p$*  ; Éd. de l'École polytechnique, 2010.
- [26] Marzin, J., and Bastard, G. (1994) Calculation of the energy levels in quantum dots. *Solid State Communications* 92, 437–442.
- [27] Cohen-Tannoudji, C., Dupont-Roc, J., and Grynberg, G. *Processus d'interaction entre photons et atomes* ; EDP Sciences ; CNRS Éditions, 1988.
- [28] Grynberg, G., Aspect, A., and Fabre, C. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique* ; Ellipses-Edition Marketing, 1997.
- [29] Bastard, G. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, 1st ed. ; Les Editions de Physique ; Halsted Press, 1988.
- [30] Ivchenko, E. L., and Pikus, G. E. *Superlattices and other heterostructures : symmetry and optical phenomena*, 2nd ed. ; Springer, 1997.
- [31] Vasanelli, A., Ferreira, R., and Bastard, G. (2002) Continuous Absorption Background and Decoherence in Quantum Dots. *Physical Review Letters* 89, 216804+.
- [32] Toda, Y., Moriwaki, O., Nishioka, M., and Arakawa, Y. (1999) Efficient Carrier Relaxation Mechanism in InGaAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots Based on the Existence of Continuum States. *Physical Review Letters* 82, 4114–4117.
- [33] Oulton, R., Finley, J. J., Tartakovskii, A. I., Mowbray, D. J., Skolnick, M. S., Hopkinson, M., Vasanelli, A., Ferreira, R., and Bastard, G. (2003) Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled Stranski-Krastanow quantum dots. *Physical Review B* 68, 235301+.
- [34] Cassabois, G. (2006) Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs. *HDR Université Paris VI*
- [35] Bockelmann, U., and Bastard, G. (1990) Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. *Physical Review B* 42, 8947–8951.
- [36] Benisty, H., Torrès, C. M. S., and Weisbuch, C. (1991) Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems. *Physical Review B* 44, 10945–10948.
- [37] Vasanelli, A. Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement. Ph.D. thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI, 2002.
- [38] Bir, G. L., Pikus, G. E., Shelnitz, P., and Louvish, D. *Symmetry and strain-induced effects in semiconductors* ; Wiley ; Israel Program for Scientific Translations ; Distributed by Wiley, 1976.

- [39] Ivchenko, E. L. (1997) Fine Structure of Excitonic Levels in Semiconductor Nanostructures. *phys. stat. sol. (a)* *164*, 487–492.
- [40] Takagahara, T. (2000) Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots. *Physical Review B* *62*, 16840–16855.
- [41] Bayer, M., Ortner, G., Stern, O., Kuther, A., Gorbunov, A. A., Forchel, A., Hawrylak, P., Fafard, S., Hinzer, K., Reinecke, T. L., Walck, S. N., Reithmaier, J. P., Klopff, F., and Schäfer, F. (2002) Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B* *65*, 195315+.
- [42] Pfeffer, P., and Zawadzki, W. (1990) Conduction electrons in GaAs : Five-level k.p theory and polaron effects. *Physical Review B* *41*, 1561–1576.
- [43] Kikkawa, J. M., Smorchkova, I. P., Samarth, N., and Awschalom, D. D. (1997) Room-Temperature Spin Memory in Two-Dimensional Electron Gases. *Science* *277*, 1284–1287.
- [44] Tribollet, J. Dynamique des spins électroniques et excitoniques dans les nanostructures 2D et 0D de semiconducteurs, mesurée par des expériences pompe-sonde de rotation Faraday photo-induite résolue en temps à l'échelle picoseconde. Ph.D. thesis, Université Paris VII, 2003.
- [45] Aubry, E. Relaxation et décohérence de spin des porteurs localisés dans des nanostructures semiconductrices OD. Ph.D. thesis, Université Paris VI, 2007.
- [46] Bernardot, F., Aubry, E., Tribollet, J., Testelin, C., Chamarro, M., Lombez, L., Braun, P. F., Marie, X., Amand, T., and Gérard, J. M. (2006) Linear and dynamical photoinduced dichroisms of InAs/GaAs self-assembled quantum dots : Population relaxation and decoherence measurements. *Physical Review B* *73*, 085301+.
- [47] Yugova, I. A., Glazov, M. M., Ivchenko, E. L., and Al, (2009) Pump-probe Faraday rotation and ellipticity in an ensemble of singly charged quantum dots. *Physical Review B* *80*, 104436+.
- [48] Machnikowski, P., and Kuhn, T. (2010) Theory of the time-resolved Kerr rotation in ensembles of trapped holes in semiconductor nanostructures. *Physical Review B* *81*, 115306+.
- [49] Fano, U. (1957) Description of States in Quantum Mechanics by Density Matrix and Operator Techniques. *Reviews of Modern Physics* *29*, 74–93.
- [50] Bambini, A., and Lindberg, M. (1984) Transition probability of a two-level atom interacting with a time-symmetric pulse. *Physical Review A* *30*, 794–802.

- 
- [51] Cagnac, B., and Faroux, J.-P. *Lasers : interaction lumière-atomes* ; EDP Sciences ; CNRS Editions, 2002.
- [52] Yafet, Y. (1961) Hyperfine interaction due to orbital magnetic moment of electrons with large g factors. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 21, 99–104.
- [53] Cohen-Tannoudji, C., Diu, B., and Laloë, F. *Mécanique quantique* ; Hermann, 1988.
- [54] Abragam, A. *The principles of nuclear magnetism* ; Oxford University Press, 1961.
- [55] Gueron, M. (1964) Density of the Conduction Electrons at the Nuclei in Indium Antimonide. *Physical Review Online Archive (Prola)* 135, A200–A205.
- [56] Paget, D., Lampel, G., Sapoval, B., and Safarov, V. I. (1977) Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions. *Physical Review B* 15, 5780–5796.
- [57] Kozlov, G. (2007) Exactly solvable spin dynamics of an electron coupled to a large number of nuclei ; the electron-nuclear spin echo in a quantum dot. *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 105, 803–815.
- [58] Krizhanovskii, D., Ebbens, A., Tartakovskii, A., Pulizzi, F., Wright, T., Skolnick, M., and Hopkinson, M. (2005) Individual neutral and charged InGaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy. *Physical Review B* 72, 161312+.
- [59] Léger, Y., Besombes, L., Maingault, L., and Mariette, H. (2007) Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots. *Physical Review B* 76, 045331+.
- [60] Desfonds, P., Eble, B., Fras, F., Testelin, C., Bernardot, F., Chamarro, M., Urbaszek, B., Amand, T., Marie, X., Gérard, J. M., Mieg, V. T., Miard, A., and Lemaître, A. (2010) Electron and hole spin cooling efficiency in InAs quantum dots : The role of nuclear field. *Applied Physics Letters* 96, 172108+.
- [61] Belhadj, T., Amand, T., Kunold, A., Simon, C. M., Kuroda, T., Abbarchi, M., Mano, T., Sakoda, K., Kunz, S., Marie, X., and Urbaszek, B. (2010) Impact of heavy hole-light hole coupling on optical selection rules in GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters* 97, 051111+.
- [62] Grncharova, E., and Perel, V. P. (1977) RELAXATION OF NUCLEAR SPINS INTERACTING WITH HOLES IN SEMICONDUCTORS. *SOVIET PHYSICS SEMICONDUCTORS-USSR*
- [63] Testelin, C., Bernardot, F., Eble, B., and Chamarro, M. (2009) Hole-spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots. *Physical Review B* 79, 195440+.

- [64] Fischer, J., Coish, W. A., Bulaev, D. V., and Loss, D. (2008) Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot. *Physical Review B* *78*, 155329+.
- [65] Chekhovich, E. A., Krysa, A. B., Hopkinson, M., Senellart, P., Lemaitre, A., Skolnick, M. S., and Tartakovskii, A. I. (2011) Isotope sensitive measurement of the hole-nuclear spin interaction in quantum dots.
- [66] Fallahi, P., Yilmaz, S. T., and Imamoglu, A. (2010) Measurement of a Heavy-Hole Hyperfine Interaction in InGaAs Quantum Dots Using Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters* *105*, 257402+.
- [67] Boguslawski, P., and Gorczyca, I. (1994) Atomic-orbital interpretation of electronic structure of III-V semiconductors : GaAs versus AlAs. *Semiconductor Science and Technology* *9*, 2169+.
- [68] Eble, B., Desfonds, P., Fras, F., Bernardot, F., Testelin, C., Chamarro, M., Miard, A., and Lemaitre, A. (2010) Hole and trion spin dynamics in quantum dots under excitation by a train of circularly polarized pulses. *Physical Review B* *81*, 045322+.
- [69] Koudinov, A. V., Akimov, I. A., Yu., and Henneberger, F. (2004) Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots. *Physical Review B* *70*, 241305+.
- [70] Lü, C., Cheng, J. L., and Wu, M. W. (2005) Hole spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B* *71*, 075308+.
- [71] Heiss, D., Schaeck, S., Huebl, H., Bichler, M., Abstreiter, G., Finley, J. J., Bulaev, D. V., and Loss, D. (2007) Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots. *Physical Review B* *76*, 241306+.
- [72] Trif, M., Simon, P., and Loss, D. (2009) Relaxation of Hole Spins in Quantum Dots via Two-Phonon Processes. *Physical Review Letters* *103*, 106601+.
- [73] Wei, H., Gong, M., Guo, G. C., and He, L. (2010) Atomistic theory of spin relaxation in self-assembled In<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>As/GaAs quantum dots at zero magnetic field. *arXiv :1011.4724v1*
- [74] Shabaev, A., Al, Gammon, D., and Merkulov, I. A. (2003) Optical readout and initialization of an electron spin in a single quantum dot. *Physical Review B* *68*, 201305+.
- [75] Lombez, L., Braun, P. F., Marie, X., Renucci, P., Urbaszek, B., Amand, T., Krebs, O., and Voisin, P. (2007) Electron spin quantum beats in positively charged quantum dots : Nuclear field effects. *Physical Review B* *75*, 195314+.
- [76] Damen, T. C., Via, L., Cunningham, J. E., Shah, J., and Sham, L. J. (1991) Subpicosecond spin relaxation dynamics of excitons and free carriers in GaAs quantum wells. *Physical Review Letters* *67*, 3432–3435.

- 
- [77] Kurtze, H., Seebeck, J., Gartner, P., Yakovlev, D. R., Reuter, D., Wieck, A. D., Bayer, M., and Jahnke, F. (2009) Carrier relaxation dynamics in self-assembled semiconductor quantum dots. *Physical Review B* *80*, 235319+.
- [78] Woods, L. M., Reinecke, T. L., and Geller, Y. L. (2002) Spin relaxation in quantum dots. *Physical Review B* *66*, 161318+.
- [79] Golovach, V. N., Khaetskii, A., and Loss, D. (2004) Phonon-Induced Decay of the Electron Spin in Quantum Dots. *Physical Review Letters* *93*, 016601+.
- [80] Woods, L. M., Reinecke, T. L., and Kotlyar, R. (2004) Hole spin relaxation in quantum dots. *Physical Review B* *69*, 125330+.
- [81] Bulaev, D., and Loss, D. (2005) Spin Relaxation and Decoherence of Holes in Quantum Dots. *Physical Review Letters* *95*, 076805+.
- [82] Elzerman, J. M., Hanson, R., Willems van Beveren, L. H., Witkamp, B., Vandersypen, L. M. K., and Kouwenhoven, L. P. (2004) Single-shot read-out of an individual electron spin in a quantum dot. *Nature* *430*, 431–435.
- [83] Kroutvar, M., Ducommun, Y., Heiss, D., Bichler, M., Schuh, D., Abstreiter, G., and Finley, J. J. (2004) Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. *Nature* *432*, 81–84.
- [84] Lu, C. Y., Zhao, Y., Vamivakas, A. N., Matthiesen, C., Fält, S., Badolato, A., and Atatüre, M. (2010) Direct measurement of spin dynamics in InAs/GaAs quantum dots using time-resolved resonance fluorescence. *Physical Review B* *81*, 035332+.
- [85] Fras, F., Eble, B., Desfonds, P., Bernardot, F., Testelin, C., Chamarro, M., Miard, A., and Lemaitre, A. (2011) Hole-spin initialization and relaxation times in InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B* *84*.
- [86] Emary, C., Xu, X., Steel, D. G., Saikin, S., and Sham, L. J. (2007) Fast Initialization of the Spin State of an Electron in a Quantum Dot in the Voigt Configuration. *Physical Review Letters* *98*, 047401+.
- [87] Xu, X., Wu, Y., Sun, B., Huang, Q., Cheng, J., Steel, D. G., Bracker, A. S., Gammon, D., Emary, C., and Sham, L. J. (2007) Fast Spin State Initialization in a Singly Charged InAs-GaAs Quantum Dot by Optical Cooling. *Physical Review Letters* *99*, 097401+.
- [88] Atatüre, M., Dreiser, J., Badolato, A., Högele, A., Karrai, K., and Imamoglu, A. (2006) Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity. *Science* *312*, 551–553.

- [89] Hassanieh, K. A. A., Dobrovitski, V. V., Dagotto, E., and Harmon, B. N. (2006) Numerical Modeling of the Central Spin Problem Using the Spin-Coherent-State  $\mathbb{P}\mathbb{S}$  Representation. *Physical Review Letters* *97*, 037204+.
- [90] Cywiński, L., Witzel, W. M., and Sarma, S. D. (2009) Electron Spin Dephasing due to Hyperfine Interactions with a Nuclear Spin Bath. *Physical Review Letters* *102*, 057601+.
- [91] Yao, W., Liu, R. B., and Sham, L. J. (2006) Theory of electron spin decoherence by interacting nuclear spins in a quantum dot. *Physical Review B* *74*, 195301+.
- [92] Liu, R.-B., Yao, W., and Sham, L. J. (2007) Control of electron spin decoherence caused by electron-nuclear spin dynamics in a quantum dot. *New Journal of Physics* *9*, 226.
- [93] Auer, T., Oulton, R., Bauschulte, A., Yakovlev, D. R., Bayer, M., Yu, Cherbunin, R. V., Reuter, D., and Wieck, A. D. (2009) Measurement of the Knight field and local nuclear dipole-dipole field in an InGaAs/GaAs quantum dot ensemble. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* *80*, 205303+.
- [94] Merkulov, I. A., Alvarez, G., Yakovlev, D. R., and Schulthess, T. C. (2009) Long-term Dynamics of the Electron-nuclear Spin System of a Semiconductor Quantum Dot.
- [95] Pal, B., Yu, S., Ignatiev, I. V., Ikezawa, M., and Masumoto, Y. (2007) Nuclear-spin effects in singly negatively charged InP quantum dots. *Physical Review B* *75*, 125322+.
- [96] Clark, P. J., and Evans, F. C. (1954) Distance to Nearest Neighbor as a Measure of Spatial Relationships in Populations. *Ecology* *35*, 445–453.
- [97] Ponomarev, I. V., Flambaum, V. V., and Efros, A. L. (1999) Spin structure of impurity band in semiconductors in two- and three-dimensional cases. *Physical Review B* *60*, 5485–5496.
- [98] Miller, R. (1982) Bound excitons in p-doped GaAs quantum wells. *Solid State Communications* *43*, 519–522.
- [99] Masselink, W. T., Chang, Y. C., and Morkoç, H. (1983) Binding energies of acceptors in GaAs AlGaAs quantum wells. *Physical Review B* *28*, 7373–7376.
- [100] Kavokin, K. V. (2004) Symmetry of anisotropic exchange interactions in semiconductor nanostructures. *Physical Review B* *69*, 075302+.
- [101] Cardona, M., Christensen, N. E., and Fasol, G. (1986) Terms Linear in  $k$  in the Band Structure of Zinc-Blende-Type Semiconductors. *Physical Review Letters* *56*, 2831–2833.

- 
- [102] Baldereschi, A., and Lipari, N. O. (1973) Spherical Model of Shallow Acceptor States in Semiconductors. *Physical Review B* 8, 2697–2709.
- [103] Vurgaftman, I., Meyer, J. R., and Mohan, L. R. R. (2001) Band parameters for III V compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics* 89, 5815–5875.
- [104] Zhao, Q. X., Holtz, P. O., Pasquarello, A., Monemar, B., Ferreira, A. C., Sundaram, M., Merz, J. L., and Gossard, A. C. (1994) Magnetic properties of the  $S$ -like bound hole states in GaAs/AlGaAs quantum wells. *Physical Review B* 49, 10794–10797.
- [105] Taylor, J. M., Imamoglu, A., and Lukin, M. D. (2003) Controlling a Mesoscopic Spin Environment by Quantum Bit Manipulation. *Physical Review Letters* 91, 246802+.
- [106] Taylor, J. M., Marcus, C. M., and Lukin, M. D. (2003) Long-Lived Memory for Mesoscopic Quantum Bits. *Physical Review Letters* 90, 206803+.
- [107] Yao, W. (2011) Many-body singlets by dynamic spin polarization. *Physical Review B* 83, 201308+.
- [108] Zhang, W., Hu, J.-L., Zhuang, J., You, J. Q., and Liu, R.-B. (2010) Protection of center-spin coherence by a dynamically polarized nuclear spin core.
- [109] Brown, S. W., Kennedy, T. A., Gammon, D., and Snow, E. S. (1996) Spectrally resolved Overhauser shifts in single  $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  As quantum dots. *Physical Review B* 54, R17339–R17342.
- [110] Braun, P. F., Urbaszek, B., Amand, T., Marie, X., Krebs, O., Eble, B., Lemaitre, A., and Voisin, P. (2006) Bistability of the nuclear polarization created through optical pumping in  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  quantum dots. *Physical Review B* 74, 245306+.
- [111] Maletinsky, P., Lai, C. W., Badolato, A., and Imamoglu, A. (2007) Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins. *Physical Review B* 75, 035409+.
- [112] Krebs, O., Eble, B., Lemaitre, A., Voisin, P., Urbaszek, B., Amand, T., and Marie, X. (2008) Hyperfine interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots : dynamical nuclear polarization versus spin relaxation. *Comptes Rendus Physique* 9, 874–884.
- [113] Cherbunin, R. V., Verbin, S. Y., Auer, T., Yakovlev, D. R., Reuter, D., Wieck, A. D., Gerlovin, I. Y., Ignatiev, I. V., Vishnevsky, D. V., and Bayer, M. (2009) Dynamics of the nuclear spin polarization by optically oriented electrons in a (In,Ga)As/GaAs quantum dot ensemble. *Physical Review B* 80, 035326+.
- [114] Chekhovich, E. A., Krysa, A. B., Skolnick, M. S., and Tartakovskii, A. I. (2011) Direct Measurement of the Hole-Nuclear Spin Interaction in Single  $\text{InP}/\text{GaInP}$  Quantum Dots Using Photoluminescence Spectroscopy. *Physical Review Letters* 106, 027402+.

- [115] Belhadj, T., Simon, C. M., Amand, T., Renucci, P., Chatel, B., Krebs, O., Lemaitre, A., Voisin, P., Marie, X., and Urbaszek, B. (2009) Controlling the Polarization Eigenstate of a Quantum Dot Exciton with Light. *Physical Review Letters* *103*, 086601+.
- [116] Yugova, I., Greilich, A., Zhukov, E., Yakovlev, D., Bayer, M., Reuter, D., and Wieck, A. (2007) Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pump-probe Faraday rotation. *Physical Review B* *75*, 195325+.
- [117] Maletinsky, P., Badolato, A., and Imamoglu, A. (2007) Dynamics of Quantum Dot Nuclear Spin Polarization Controlled by a Single Electron. *Physical Review Letters* *99*, 056804+.
- [118] *American Institute of Physics Handbook* ; New York, McGraw-Hill, 1973.
- [119] Sundfors, R. K. (1974) Experimental gradient-elastic tensors and chemical bonding in III-V semiconductors. *Physical Review B* *10*, 4244–4252.
- [120] Bayer, M., Stern, O., Kuther, A., and Forchel, A. (2000) Spectroscopic study of dark excitons in InAs GaAs self-assembled quantum dots by a magnetic-field-induced symmetry breaking. *Physical Review B* *61*, 7273–7276.
- [121] Stievater, T. H., Li, X., Steel, D. G., Gammon, D., Katzer, D. S., Park, D., Piermarocchi, C., and Sham, L. J. (2001) Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots. *Physical Review Letters* *87*, 133603+.
- [122] Besombes, L., Baumberg, J. J., and Motohisa, J. (2003) Coherent Spectroscopy of Optically Gated Charged Single InGaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters* *90*, 257402+.
- [123] Enderlin, A., Ravaro, M., Voliotis, V., Grousson, R., and Wang, X. L. (2009) Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms. *Physical Review B* *80*, 085301+.
- [124] Petta, J. R., Johnson, A. C., Taylor, J. M., Laird, E. A., Yacoby, A., Lukin, M. D., Marcus, C. M., Hanson, M. P., and Gossard, A. C. (2005) Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots. *Science* *309*, 2180–2184.
- [125] Greilich, A., Yakovlev, D. R., Shabaev, A., Efros, A., Yugova, I. A., Oulton, R., Stavarache, V., Reuter, D., Wieck, A., and Bayer, M. (2006) Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots. *Science* *313*, 341–345.
- [126] Greilich, A., Oulton, R., Zhukov, E. A., Yugova, I. A., Yakovlev, D. R., Bayer, M., Shabaev, A., Al, Merkulov, I. A., Stavarache, V., Reuter, D., and Wieck, A. (2006) Optical Control of Spin Coherence in Singly Charged InAsGaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters* *96*, 227401+.

- 
- [127] Godden, T. M., Quilter, J. H., Ramsay, A. J., Wu, Y., Brereton, P., Boyle, S. J., Luxmoore, I. J., Puebla-Nunez, J., Fox, A. M., and Skolnick, M. S. (2011) Coherent optical control of the spin of a single hole in a quantum dot.
- [128] De Greve, K., McMahon, P. L., Press, D., Ladd, T. D., Bisping, D., Schneider, C., Kamp, M., Worschech, L., Hoeffling, S., Forchel, A., and Yamamoto, Y. (2011) Coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit.
- [129] Mandel, L., and Wolf, E. *Optical coherence and quantum optics*, 1st ed.; Cambridge University Press, 1995.
- [130] Dutt, M. V. G., Cheng, J., Li, B., Xu, X., Li, X., Berman, P. R., Steel, D. G., Braacker, A. S., Gammon, D., Economou, S. E., Liu, R. B., and Sham, L. J. (2005) Stimulated and Spontaneous Optical Generation of Electron Spin Coherence in Charged GaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters* *94*, 227403+.
- [131] Koppens, F. H. L., Folk, J. A., Elzerman, J. M., Hanson, R., van Beveren, L. H. W., Vink, I. T., Tranitz, H. P., Wegscheider, W., Kouwenhoven, L. P., and Vandersypen, L. M. K. (2005) Control and Detection of Singlet-Triplet Mixing in a Random Nuclear Field. *Science* *309*, 1346–1350.
- [132] Slichter, C. P. *Principles of magnetic resonance*; Springer, 1992.
- [133] Greilich, A., Wiemann, M., Hernandez, F. G. G., Yakovlev, D. R., Yugova, I. A., Bayer, M., Shabaev, A., Al, Reuter, D., and Wieck, A. D. (2007) Robust manipulation of electron spin coherence in an ensemble of singly charged quantum dots. *Physical Review B* *75*, 233301+.
- [134] Greilich, A., Spatzek, S., Yugova, I. A., Akimov, I. A., Yakovlev, D. R., Al, Reuter, D., Wieck, A. D., and Bayer, M. (2009) Collective single-mode precession of electron spins in an ensemble of singly charged (In,Ga)As/GaAs quantum dots. *Physical Review B* *79*, 201305+.
- [135] Awschalom, D., Loss, D., and Samarth, N. *Semiconductor spintronics and quantum computation*; Springer p. 147-193, 2002.
- [136] Economou, S. E., Liu, R. B., Sham, L. J., and Steel, D. G. (2005) Unified theory of consequences of spontaneous emission in a Lambda system. *Physical Review B* *71*, 195327+.
- [137] Crooker, S. A., Brandt, J., Sandfort, C., Greilich, A., Yakovlev, D. R., Reuter, D., Wieck, A. D., and Bayer, M. (2010) Spin Noise of Electrons and Holes in Self-Assembled Quantum Dots. *Physical Review Letters* *104*, 036601+.

- [138] Bayer, M., Kuther, A., Schäfer, F., Reithmaier, J. P., and Forchel, A. (1999) Strong variation of the exciton g factors in self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B* 60, R8481–R8484.
- [139] Pryor, C. E., and Pistol, M. E. (2005) Band-edge diagrams for strained III V semiconductor quantum wells, wires, and dots. *Physical Review B* 72, 205311+.
- [140] Pryor, C. E., and Flatté, M. E. (2006) Lande g Factors and Orbital Momentum Quenching in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters* 96, 026804+.
- [141] Brunner, D., Gerardot, B. D., Dalgarno, P. A., Wüst, G., Karrai, K., Stoltz, N. G., Petroff, P. M., and Warburton, R. J. (2009) A Coherent Single-Hole Spin in a Semiconductor. *Science* 325, 70–72.
- [142] Li, Y. Q., Steuerman, D. W., Berezovsky, J., Seferos, D. S., Bazan, G. C., and Awschalom, D. D. (2006) Cavity enhanced Faraday rotation of semiconductor quantum dots. *Applied Physics Letters* 88, 193126+.
- [143] Hu, C. Y., Young, A., O'Brien, J. L., Munro, W. J., and Rarity, J. G. (2008) Giant optical Faraday rotation induced by a single-electron spin in a quantum dot : Applications to entangling remote spins via a single photon. *Physical Review B* 78, 085307+.
- [144] Ryabchenko, S., and Semyonov, Y. (1983) Spin correlations-effects for a large-radius electron center in magnetically-mixed semiconductors. *Sov. Phys. JETP* 57, 825 [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 84, 1419]
- [145] Yu, Kozlov, G. G., Ignatiev, I. V., Cherbunin, R. V., Yakovlev, D. R., and Bayer, M. (2009) Coupled electron-nuclear spin dynamics in quantum dots : A graded box model approach. *Physical Review B* 80, 125318+.
- [146] Arbenz, P. (1992) Divide and conquer algorithms for the bandsymmetric eigenvalue problem. *Parallel Computing* 18, 1105–1128.
- [147] Gansterer, W. N., Ward, R. C., Muller, R. P., Goddard, W. A., and III, (2003) Computing Approximate Eigenpairs of Symmetric Block Tridiagonal Matrices. *SIAM Journal on Scientific Computing* 25, 65–85.