



HAL
open science

manipulation du spin et de la cohérence dans des boîtes quantiques d'inas/gaas par expériences pompe-sonde résonnantes

Bruno Siarry

► **To cite this version:**

Bruno Siarry. manipulation du spin et de la cohérence dans des boîtes quantiques d'inas/gaas par expériences pompe-sonde résonnantes . Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie, 2015. Français. NNT: . tel-01278652v1

HAL Id: tel-01278652

<https://theses.hal.science/tel-01278652v1>

Submitted on 24 Feb 2016 (v1), last revised 20 Jun 2016 (v2)

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.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0
International License



**THÈSE DE DOCTORAT DE
L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité
Science des matériaux

Ecole doctorale physique et chimie des matériaux (ED 397)

Présentée par

Bruno SIARRY

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

**Manipulation du spin et de la cohérence dans des boîtes
quantiques d'InAs/GaAs par expériences pompe-sonde
résonantes.**

soutenue le 17 décembre 2015 devant le jury composé de :

M. Lucien BESOMBES	Rapporteur
Mme. Maria VLADIMIROVA	Rapporteur
M. Jérôme TIGNON	Examineur
M. Régis ANDRÉ	Examineur
Mme. Maria CHAMARRO	Directrice de thèse
M. Benoît EBLE	Membre invité

Préparée à l'Institut des Nanosciences de Paris (INSP CNRS-UMR 7588)

Remerciement

Cette thèse a été réalisée à l'Institut des Nanosciences de Paris (INSP), dans un environnement scientifique riche et stimulant.

Je dois remercier tout d'abord Maria Chamarro et Christophe Testelin, d'avoir dirigé cette thèse, et de m'avoir fourni les moyens matériels pour la réaliser.

Pour son encadrement sans faille et précieux, je remercie tout spécialement Benoît Eble. Merci de m'avoir transmis une partie de tes connaissances, de tes méthodes de travail et de ta curiosité scientifique. Je pense que ta patience et ta pédagogie seront très appréciées par le petit Baptiste.

Merci à Patricio Grinberg, pour toute notre collaboration qui s'est faite dans la bonne humeur et avec sympathie.

Merci à Frédéric Bernardot, pour m'avoir guidé consciencieusement dans les calculs et l'expérience, ainsi que pour sa relecture méticuleuse de mon manuscrit (faite avec le reste de l'équipe).

Je remercie particulièrement Mathieu Bernard pour son expertise, aussi bien dans la réparation de notre cryostat maudit que dans le développement de nouveaux dispositifs précis ; mais aussi pour son soutien technique dans des problématiques plus cyclistes que scientifiques.

Merci pour leur soutien technique et leur réactivité à Florent Margallian, Silbé Marjab, et Francis Breton. Je remercie aussi les services de secrétariat et de gestion de l'INSP, qui ont été à la fois patients et réactifs.

Merci au reste de l'équipe Nanostructures, dirigée par Catherine Gourdon, de m'avoir fait partager leur expérience et une partie de leur travail, dans la bonne humeur, Valia, Roger, Richard, Laura, Bernard et Florent.

Enfin, au moment de partir, j'ai une pensée émue pour mes collègue et maintenant amis doctorants avec qui j'ai passé de très bons moments ces trois dernières

années. La team des représentants : Diego le premier puis Cyril et Céline la relève. Mais aussi pour de *vrais physiciens* du fameux bureau 208 22-23 ; Léonard le premier, qui a partagé avec moi ses (maigres) connaissances scientifiques et notre collaboration aussi bien sur la recherche, l'enseignement et dans la vie. Sylvain aussi, pour ses discussions toujours très très présentes. Et maintenant pour la relève : Romain, Suzanne, Antoine et Andrey.

Merci enfin, à mes amis et à ma famille pour leur soutien pendant ces trois années qui m'ont paru bien courtes.

Introduction

Afin de remédier à la complexité exponentielle des simulations des systèmes quantiques à N -corps, Richard Feynman propose en 1982 [43] la création d'un ordinateur dont le fonctionnement serait lui-même quantique. Un tel ordinateur aurait une capacité de calcul bien supérieure à tous les ordinateurs actuels, grâce au stockage et à la manipulation de bits quantiques, ou *qubits*. Dès lors, de nombreux algorithmes [30, 114] ont été proposés pour tirer parti des qubits, et de nombreux systèmes (jonction Josephson, ions piégés,...) ont été proposés pour les réaliser.

L'intérêt d'un qubit repose sur la superposition de deux états quantiques orthogonaux dans la fonction d'onde qui le constitue : $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$. Cette propriété de *cohérence* du qubit rend sa réalisation compliquée, car tout système physique est en interaction avec son environnement, et cette interaction projette le système sur un de ses états propres : $|0\rangle$ ou $|1\rangle$, et provoque ainsi la perte de la cohérence, en un temps T_2 . Les systèmes candidats pour la réalisation d'un qubit, doivent donc être bien isolés de leur environnement.

Depuis leur première réalisation en 1985 [51], les boîtes quantiques d'InAs/GaAs ont rapidement été proposées pour la réalisation d'un qubit [82]. Le fort confinement électronique dans ces structures à l'échelle nanométrique, leur confère une discrétisation des énergies électroniques, propriété qui leur a valu l'appellation d'"atomes artificiels". D'un autre côté, leur aspect solide les rend pratiques à intégrer dans des dispositifs, étant donné les progrès continus des techniques et croissances dans les semi-conducteurs. Elles présentent aussi des propriétés opto-électroniques intéressantes pour la cryptographie quantique (génération de photons uniques [94] et indiscernables [96]), qui va de pair avec l'informatique quantique.

Deux réalisations de qubits différentes ont été proposées en utilisant les boîtes quantiques. La première repose sur la présence (état $|1\rangle$) ou l'absence ($|0\rangle$) d'une excitation élémentaire (une paire électron-trou) dans la boîte quantique. La possibilité de réaliser des oscillations de Rabi dans les boîtes quantiques a rapidement été démontrée [115], et les possibilités de couplage entre différentes boîtes ont été étudiées [31]. Le temps de cohérence $T_2 \sim 1$ ns obtenu est court dans l'absolu, mais long par rapport

au temps nécessaire pour réaliser des opérations avec le qubit (initialisation, manipulation, et lecture), qui peut être inférieur à la picoseconde, ce qui permet de réaliser un grand nombre d'opérations. Cependant, ce temps de cohérence est limité par le temps de recombinaison radiative de l'excitation.

La deuxième proposition de qubit dans les boîtes quantiques, utilise une projection de spin d'une charge confinée dans celle-ci [61]. On peut alors utiliser une charge résidente dans la boîte quantique, et ne plus être limité par la recombinaison radiative. De plus, il a été montré que le spin d'une charge résidente peut être initialisé de façon très efficace [75], et présente un temps de relaxation bien plus long que dans les matériaux massifs [105], grâce à l'inhibition pour les fonctions d'onde électroniques $\vec{k} = \vec{0}$ des mécanismes de relaxation liés à l'interaction spin-orbite.

Afin de mieux maîtriser la manipulation et les temps de cohérence des qubits, il est nécessaire de comprendre les mécanismes de couplage de ceux-ci à leur environnement. Si certaines interactions sont inhibées dans les boîtes quantiques, d'autres sont au contraire exaltées, à cause du fort confinement électronique. C'est le cas de l'interaction d'échange coulombienne, qui induit une structure fine des énergies électroniques, et modifie les états associés. C'est aussi le cas de l'interaction hyperfine, couplant le spin électronique aux noyaux sur lesquels sa fonction d'onde est répartie. Les noyaux induisent alors une dépolarisation du spin électronique, ou à l'inverse, une polarisation du spin électronique produit une polarisation des spins nucléaires. Les boîtes quantiques sont un système modèle pour l'étude de ces mécanismes.

C'est dans ce contexte que se situe notre étude, qui n'a pas pour objet la réalisation d'un qubit parfait, mais plutôt une description précise de ses interactions et mécanismes limitant sa cohérence. Cette étude sera faite grâce à l'étude des dynamiques électroniques dans des boîtes quantiques, aux moyens d'expériences pompe-sonde d'optique impulsionnelle. Une première version du dispositif expérimental a été réalisée au cours des thèses d'Émilie Aubry et de François Fras [7, 47], et a été améliorée au cours de cette thèse. De plus, un nouveau dispositif expérimental a été mis en place, suivant l'idée originale de Benoît Eble. Les objets étudiés sont des boîtes quantiques auto-assemblées d'arséniure d'indium dans une matrice d'arséniure de gallium, réalisées au Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN). Ces boîtes quantiques présentent une structure électronique particulière, ainsi que des couplages importants des spins nucléaires et électroniques, et ces deux caractéristiques seront amplement traitées au cours de cette thèse.

Dans le premier chapitre, nous présenterons les généralités nécessaires à l'étude des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, en commençant par leur croissance et leur structure électronique. Nous présenterons leurs interactions avec la lumière, ainsi que le couplage hyperfin. Enfin, nous présenterons leurs intérêts en tant que qubits.

Dans le deuxième chapitre, nous ferons une présentation détaillée du dispositif expérimental, en insistant particulièrement sur les éléments de modulation et de détection. Nous traiterons l'interaction de l'impulsion sonde avec des boîtes quantiques dopées p , à l'origine du signal observé. Nous donnerons alors un exemple de signal obtenu, lors d'une expérience à champ magnétique nul.

Le chapitre 3 présente les premiers résultats expérimentaux novateurs obtenus durant cette thèse, observés sur un ensemble de boîtes quantiques dopées p en champ magnétique transverse. Nous démontrerons l'excitation d'une superposition cohérente d'états de spin du trou, et sa manipulation par blocage de phase (suivant la méthode proposée par Greilich et al. en 2006 [53]). Nous présenterons la technique de blocage de phase, et verrons comment elle permet de quantifier les inhomogénéités de notre système, et de passer outre celles-ci. Ces expériences, analysées grâce à des simulations, permettront de donner une première estimation du temps de cohérence de spin du trou résident dans une boîte quantique d'InAs.

Dans le chapitre 4, nous présenterons d'abord un panorama des interactions nucléaires ayant lieu dans les boîtes quantiques, et nous verrons comment une modification mineure des conditions de l'expérience précédente permet d'observer une *polarisation nucléaire dynamique* importante. Nous caractériserons cet effet, via sa géométrie, son évolution avec le champ appliqué et sa dynamique.

Puis, dans le chapitre 5, un nouveau dispositif expérimental utilisant une détection hétérodyne sera présenté. Nous mettrons en valeur ses intérêts (et notamment sa sensibilité accrue), et son principe de fonctionnement.

Enfin dans le chapitre 6, ce dispositif sera utilisé afin d'étudier un ensemble restreint de boîtes quantiques non dopées, sous champ magnétique longitudinal. Nous verrons qu'il permet d'étudier tous les termes de la matrice densité du système : les populations ainsi que les cohérences. L'étude des cohérences et des *battements quantiques* nous permettra de quantifier les paramètres liés à la structure fine des boîtes quantiques, et notamment l'énergie de structure fine et le temps de cohérence associé. Nous verrons que l'application d'un champ magnétique permet de contrôler la phase des battements quantiques du système (de façon analogue au contrôle réalisable par un champ électrique [28]). Enfin, nous illustrerons la mise en œuvre d'expériences similaires sur une boîte quantique unique, ultime réalisation expérimentale de ce travail de thèse.

Table des matières

Remerciement	3
Introduction	5
1 Généralités sur les boîtes quantiques d’InAs/GaAs	13
1.1 Historique et croissance des boîtes quantiques	13
1.1.1 Historique des nanostructures	13
1.1.2 Synthèse et applications des boîtes quantiques	14
1.2 Structure électronique et quantification des états	16
1.2.1 Semiconducteurs massifs	17
1.2.2 États électroniques confinés dans un puits quantique	19
1.2.3 Structure intra-bande dans les boîtes quantiques	22
1.2.4 Interaction coulombienne et corrections énergétiques	23
1.3 Adressage optique et interaction avec la lumière	25
1.3.1 Hamiltonien d’interaction	26
1.3.2 Règles de sélection optique	27
1.3.3 Couche de mouillage et continuum d’absorption	29
1.4 Dynamique de spin dans les boîtes quantiques	31
1.4.1 Relaxation du spin dans les semi-conducteurs massifs	31
1.4.2 Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques	32
1.5 Applications et motivations du travail de thèse	37
1.5.1 Qubits à base de spin	37
1.5.2 Motivations	39
2 Dispositif expérimental pompe-sonde	41
2.1 Dispositif expérimental pompe-sonde	41
2.1.1 Intérêt des expériences pompe-sonde	41
2.1.2 Dispositif expérimental	42
2.1.3 Conditions expérimentales et échantillons	49
2.2 Interaction de la sonde avec l’échantillon, et démodulation du signal . .	50
2.3 Signal de dichroïsme circulaire photo-induit typique d’un ensemble de BQ en l’absence de champ appliqué	53

3	Précession de spins en champ transverse et blocage de phase	57
3.1	Introduction et contexte	57
3.1.1	Mesure du T_2 par effet Hanle	58
3.1.2	Mesure du taux de polarisation circulaire résolue en temps	58
3.1.3	Pompage résonnant et population piégée	59
3.1.4	Blocage de phase	60
3.2	Dynamique de spin en champ transverse et principe du blocage de phase	61
3.2.1	Précession de spins en champ transverse : une description macroscopique	61
3.2.2	Principe du blocage de phase	62
3.2.3	Signal de dichroïsme circulaire photo-induit dans les conditions de blocage de phase	64
3.2.4	Évolution des facteurs de Landé et de leur distribution	67
3.3	Modélisation de la dynamique temporelle et évaluation du T_2 du spin du trou	75
3.3.1	Hamiltonien Zeeman et description du système	75
3.3.2	Dynamique et décohérence de Lindblad	77
3.3.3	Simulation des résultats expérimentaux et estimation du T_2	79
3.4	Conclusion	84
4	Effets de polarisation nucléaire dynamique en champ transverse	87
4.1	Dynamique de polarisation et interactions nucléaires dans les BQ	88
4.1.1	Interaction hyperfine	88
4.1.2	Interaction quadripolaire dans les BQ	93
4.1.3	Interaction dipolaire des spins nucléaires	96
4.2	Observations de PND en champ transverse	97
4.2.1	Expériences de Dzhioev en 2007	97
4.2.2	Expériences de Krebs en 2009	99
4.3	Résultats expérimentaux et analyse	100
4.3.1	Conditions d'excitation et renormalisation	101
4.3.2	Première observation de polarisation dynamique des noyaux en champ nul	102
4.3.3	Effets nucléaires lors d'une excitation asymétrique en champ transverse	106
4.3.4	Évolution en champ du signal de PCD	109
4.3.5	Dynamique longue de la polarisation nucléaire	114
5	Expérience pompe sonde avec détection hétérodyne.	123
5.1	Dispositif expérimental	124
5.2	Détection hétérodyne, caractéristiques et avantages	127
5.2.1	Atouts de la détection hétérodyne	128
5.2.2	Autocorrélation des impulsions	130

<i>Introduction</i>	11
5.2.3 Analyse de la polarisation	131
5.3 Conditions expérimentales et échantillons	132
6 Cohérence et manipulation des états excités de paires électron-trou d'une boîte quantique non chargée	135
6.1 Présentation et modélisation du système étudié	136
6.1.1 Échantillon de BQ non dopées et structure fine X/Y	136
6.1.2 Hamiltonien Zeeman et ellipticité des états propres	138
6.1.3 Équations de Bloch et interaction du système avec le laser pompe	140
6.1.4 Interaction du faisceau sonde avec une boîte quantique neutre .	143
6.2 Signal de réflectivité obtenu sur un ensemble de boîtes quantiques non dopées : référence co-polarisée à la sonde	146
6.2.1 Système de boîtes quantiques non dopées en l'absence de champ appliqué	147
6.2.2 Observation de battements quantiques en champ magnétique longitudinal	148
6.2.3 Estimation du T_2	153
6.2.4 Évolution de la phase des battements quantiques avec le champ magnétique	156
6.3 Signal de réflectivité contra-polarisée et changement de phase des battements quantiques	158
6.3.1 Expression du signal de réflectivité amplifié suivant y	158
6.3.2 Résultats expérimentaux	160
6.4 Signal de réflectivité sur une BQ unique, et effets de charge	163
6.4.1 Échantillon et micro-photoluminescence	163
6.4.2 Réflectivité différentielle d'une BQ unique	165
6.5 Conclusion partielle	167
Conclusion	169
Annexe A	173
Annexe B	179

Chapitre 1

Généralités sur les boîtes quantiques d'InAs/GaAs

Dans ce chapitre, nous rappellerons les propriétés générales des boîtes quantiques (BQ) d'InAs/GaAs. Nous commencerons par présenter le contexte et les principes qui ont permis leur croissance. Puis nous étudierons leur structure électronique, et l'interaction des charges confinées. Nous présenterons ensuite l'interaction des BQ avec la lumière, et les excitations optiques possibles. Nous introduirons ensuite la physique des spins dans les BQ, et l'importance de l'interaction hyperfine. Enfin nous justifierons les motivations et le plan de ce manuscrit.

1.1 Historique et croissance des boîtes quantiques

L'étude des BQ auto-assemblées s'est développée rapidement depuis leur première croissance en 1985 [51]. Il convient alors de présenter les boîtes quantiques fabriquées pour notre étude dans leur contexte historique et scientifique.

1.1.1 Historique des nanostructures

Depuis la fabrication des premiers transistors dans les années 60, la physique des semi-conducteurs a suscité un intérêt constant, aussi bien du point de vue fondamental que de celui des applications, aux développements extrêmement rapides. Les chercheurs ont rapidement compris l'intérêt des hétérostructures, d'abord pour optimiser le rendement des lasers à semi-conducteurs (à base de jonctions $p-n$). L'évolution des techniques a ensuite permis la fabrication d'hétérostructures de tailles comparables à la longueur caractéristique de la fonction d'onde électronique dans les semi-conducteurs, la longueur d'onde de de Broglie thermique : $\lambda_{dB} = \frac{h}{\sqrt{2\pi m_e^* k_B T}}$, qui est de l'ordre de 5 nm dans GaAs à température ambiante.

La structuration à l'échelle de λ_{dB} de matériaux semi-conducteurs de bandes interdites (ou *gaps*) différentes, induit des changements importants de leurs niveaux d'énergie. On peut alors observer des confinements quantiques, qui dépendent fortement de la géométrie de la structure. L'empilement d'une couche d'un matériau de faible gap entre deux couches d'un matériau de gap plus important crée un *puits quantique*, qui permet un confinement 2D des électrons dans la couche de faible gap. L'extension de ce piège dans deux dimensions, permet un confinement 1D des électrons, dans un *fil quantique*. Enfin, une encapsulation dans les trois dimensions de l'espace d'un semi-conducteur permet de créer un piège 0D pour les électrons, une boîte quantique (BQ).

Les BQ présentent une densité d'états électroniques discrète, à l'origine de leurs nombreuses applications et qui leur vaut souvent leur appellation d'*atomes artificiels*. Cependant, leur nature *solide* (elles sont constituées de $\sim 10^5$ atomes) et leur couplage à la matrice cristalline remet en cause cette analogie.

1.1.2 Synthèse et applications des boîtes quantiques

La plupart des BQ étudiées de nos jours sont formées grâce à des semi-conducteurs *III – V* (InAs, GaAs, AlGaAs, InP, ...), mais certaines peuvent être formées avec des assemblages de *II – VI* (CdTe, ZnTe, PbSe, ...). La formation de BQ a été observée pour la première fois par Ekimov en 1981, sous la forme de nano-cristaux dans des matrices vitreuses[39]. Depuis, de nombreuses applications sont à l'étude pour les BQ, dans les transistors, le photovoltaïque, les LED, ou encore les lasers[63]. Quatre types de BQ sont activement étudiés actuellement :

- Les BQ créées grâce à la synthèse chimique de structures cœur-coquille avec des matériaux *II – VI* (un cœur de CdTe dans une coquille de ZnTe par exemple). Leur synthèse chimique permet une bonne maîtrise de leur taille (et donc de leur énergie d'émission), et l'ajout de molécules permet leur fonctionnalisation, ce qui leur donne des applications intéressantes dans le milieu médical [93]. Cependant, leur structure implique certains défauts dans leurs propriétés optiques (clignotement, ionisation, ...)
- Les BQ formées par les défauts dus aux fluctuations d'interfaces, entre les couches de *GaAs* et d'*AlGaAs* dans les puits quantiques[134]. Ces BQ présentent des dimensions entre 10 et 100 nm, et un faible confinement des électrons. Elles ont inspiré de nouvelles méthodes de croissance (à base des mêmes matériaux), qui permettent le contrôle de la localisation des BQ et l'absence de contrainte dans leur structure (les *droplets*[133]).
- Des BQ de taille plus importante (100 nm) peuvent être réalisées grâce à la lithographie d'électrode, et l'application d'un champ électrique qui permet d'abaisser artificiellement le gap dans l'espace qu'elles délimitent. Ces BQ sont particulièrement intéressantes pour étudier les phénomènes de transport (ou les *flying electrons*[59]).

- Enfin les BQ obtenues par croissance auto-assemblée, qui seront étudiées dans cette thèse.

Nous allons d'abord décrire brièvement la croissance des BQ auto-assemblées.

Croissance Stranski-Krastanov

Cette méthode de croissance a été découverte par hasard en 1985 [51], bien qu'elle ait été prédite théoriquement dès 1937 par Stranski et Krastanov [117]. Comme illustré sur la figure 1.1, on dépose par épitaxie par jets moléculaires (*MBE*) des couches d'arséniure d'indium (InAs) sur un substrat d'arséniure de gallium (GaAs [001]). La différence de paramètre de maille des deux matériaux (de structure *zinc-blende*) de 7% induit de fortes contraintes dans la couche d'InAs. Ces contraintes se relaxent partiellement grâce à la formation d'îlots d'InAs de forme pyramidale, d'une dimension de 20 nm environ à leur base. Ces îlots se forment pour une épaisseur critique d'environ 1,7 mono-couches¹. On les couvre ensuite d'une couche de GaAs (d'une épaisseur de 40 nm dans notre cas), qui encapsule les îlots et leur donner une forme de lentille plate (de 2 nm de hauteur). La distance entre les BQ est suffisante pour qu'on puisse considérer leurs propriétés indépendantes (dans la majorité des cas). Une fine couche d'InAs, dite couche de mouillage (*wettinglayer*), subsiste et lie les BQ (cf. figure 1.2).

Le processus peut être répété afin d'obtenir des échantillons contenant plusieurs plans de BQ, entre lesquels on peut intercaler des couches d'impuretés, comme du Si(C) donneur (accepteur), à 2 nm d'un plan de BQ. La charge résiduelle (lacunaire) de ces dopants peut être capturée par une BQ, permettant ainsi son dopage *chimique*. Un plan de BQ peut aussi être inséré dans une structure de diode (de type Schottky [91]), qui va permettre d'en contrôler la charge grâce à l'application d'une tension électrique.

Comme nous allons le voir, ces BQ présentent un fort confinement, et une énergie permettant une émission lumineuse dans le proche infra-rouge. Cependant, leur croissance se fait par la relaxation spontanée de contraintes (qui leur vaut leur nom de BQ *auto-assemblées*), qui est un processus peu contrôlé. Le moindre changement dans les conditions de croissance (temps de pause, température, ...) induit de forts changements des caractéristiques des BQ. Tout d'abord, l'inter-diffusion du Ga dans la BQ induit une composition réelle $In_xGa_{1-x}As$, avec x entre 0,4 et 0,9². De plus, les contraintes ne sont pas entièrement relaxées, et celles qui subsistent ont des conséquences importantes (effets quadrupolaires, anisotropie, ...). Ces paramètres sont différents d'une BQ à l'autre, et induisent une dispersion de leurs énergies³, à cause de leurs fortes

1. La variation d'épaisseur de la couche déposée, permet de créer des gradients de densité surfacique de BQ, entre $10^{12}cm^{-1}$ et $10^8cm^{-1} = 1\mu m^{-1}$. Cette dernière concentration, dans une *zone frontière* de l'échantillon, permet d'isoler optiquement une BQ unique.

2. Dans la littérature, ces BQ sont souvent nommées In(Ga)As.

3. Cependant, une homogénéisation des propriétés des BQ peut être obtenue au moyen de recuit *flash*, d'environ ~ 1 min. Ces recuits vont réduire la dispersion énergétique de l'échantillon, et

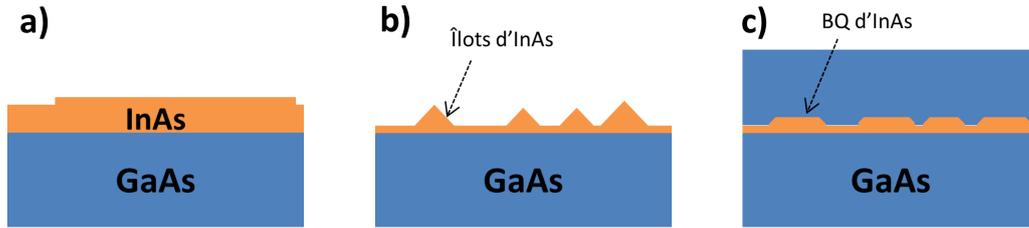


FIGURE 1.1 – La croissance Stranski-Krastanov par épitaxie par jets moléculaires se déroule en trois étapes : a) dépôt d'une fine couche d'InAs sur un substrat de GaAs [001] ; b) relaxation partielle des contraintes ; l'InAs forme des pyramides ; c) encapsulation des pyramides d'InAs qui donne aux BQ une forme finale de lentille plane. Les temps et températures associées à chaque étape ont une fort influence sur le résultat final de la croissance.

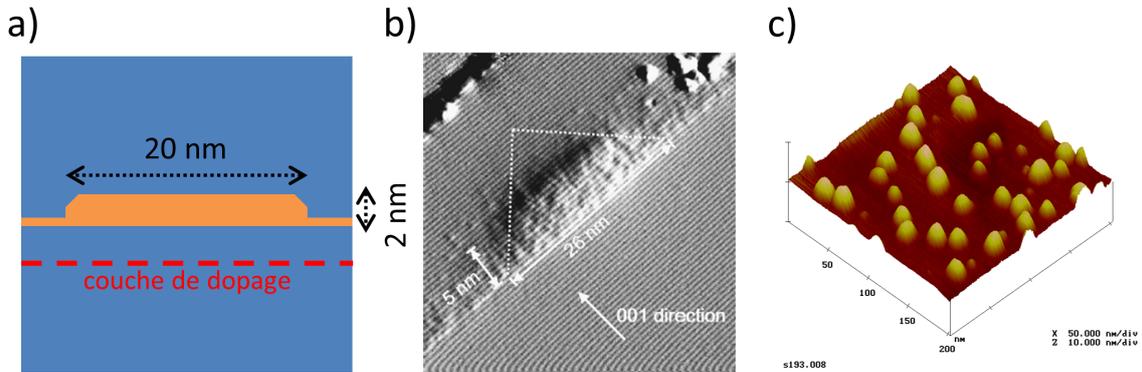


FIGURE 1.2 – a) Coupe d'une BQ dans un plan $\parallel z$ (axe de croissance) b) Image TEM d'une BQ. On peut voir qu'une boîte quantique prend une forme de pyramide tronquée. c) Image AFM d'un plan de BQ [CEA-Inac]

influences sur la structure électronique des BQ.

1.2 Structure électronique et quantification des états

Les BQ étudiées sont constituées d'InAs dans une matrice de GaAs. Nous revenons ici sur les structures de bandes dans ces matériaux, avant de voir les modifications induites par le confinement dans un puits quantique. Enfin, nous étudierons la quantification des niveaux électroniques et les interactions entre les charges au sein d'une BQ.

entraîner un léger *blueshift* à cause de la diffusion du Ga dans la BQ qu'ils provoquent.

1.2.1 Semiconducteurs massifs

Les matériaux semi-conducteurs, comme le GaAs, sont des solides dont le réseau cristallin est vu par l'électron comme un potentiel électrique périodique (de période caractéristique a). L'équation aux valeurs propres pour un électron dans le GaAs prend la forme :

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + V_c(\vec{r}) \right] |\psi_B\rangle = E |\psi_B\rangle \quad (1.1)$$

où m_0 et $|\psi_B\rangle$ sont la masse et la fonction d'onde de l'électron, et V_c est le potentiel dû au réseau cristallin. Il est connu que ce hamiltonien a pour solution les fonctions de Bloch, de la forme [64] :

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

où V est le volume du cristal et $|u_{n,\vec{k}}\rangle$ sont des fonctions d'onde *atomiques* présentant la même périodicité que le réseau et dépendant du quasi-vecteur d'onde \vec{k} . Elles sont réparties sur plusieurs *bandes* d'énergie identifiées par l'indice n . Pour les semi-conducteurs à gap direct (comme GaAs et InAs), la description des propriétés optiques nécessite la connaissance des fonctions d'onde au centre Γ de la zone de Brillouin. Lorsque $\vec{k} = \vec{0}$, ces fonctions d'onde $|u_{n,\vec{0}}\rangle$ ont les symétries des orbitales atomiques qui sont à l'origine de leur propriété conductrice (symétrie s), ou de valence (symétrie p). Elles peuvent être obtenues grâce à la méthode de Kane [62], et sont données dans le tableau 1.5.

Lorsque \vec{k} est non nul, l'équation (1.1) se réécrit :

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + \frac{\hbar\vec{k}\cdot\vec{p}}{m_0} + \frac{\hbar^2\vec{k}^2}{2m_0} + V_c(\vec{r}) \right] |u_{n,\vec{k}}\rangle = \left(\hat{H}(\vec{k} = \vec{0}) + \hat{H}_1 \right) |u_{n,\vec{k}}\rangle = E |u_{n,\vec{k}}\rangle \quad (1.3)$$

où le terme en \vec{k}^2 donne l'énergie cinétique de l'électron délocalisé, et le terme en $\vec{k}\cdot\vec{p}$ induit un couplage entre les différentes bandes d'énergie. Au voisinage du centre de la zone de Brillouin (définie ici comme étant le point Γ), $\vec{k} \rightarrow \vec{0}$ et on peut traiter ce terme comme une perturbation. Ce *formalisme* $\vec{k}\cdot\vec{p}$ introduit dans les années 50 [64] permet d'obtenir les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde atomiques pour un \vec{k} donné, et utilise les fonctions de Bloch en centre de zone $|u_{i,\vec{0}}\rangle$ comme base complète pour l'écriture de $|u_{i,\vec{k}}\rangle$:

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2\vec{k}^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{i \neq n} \frac{|\langle u_{n,\vec{0}} | \vec{k}\cdot\vec{p} | u_{i,\vec{0}} \rangle|^2}{E_{i,\vec{0}} - E_{n,\vec{0}}} \quad (1.4)$$

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

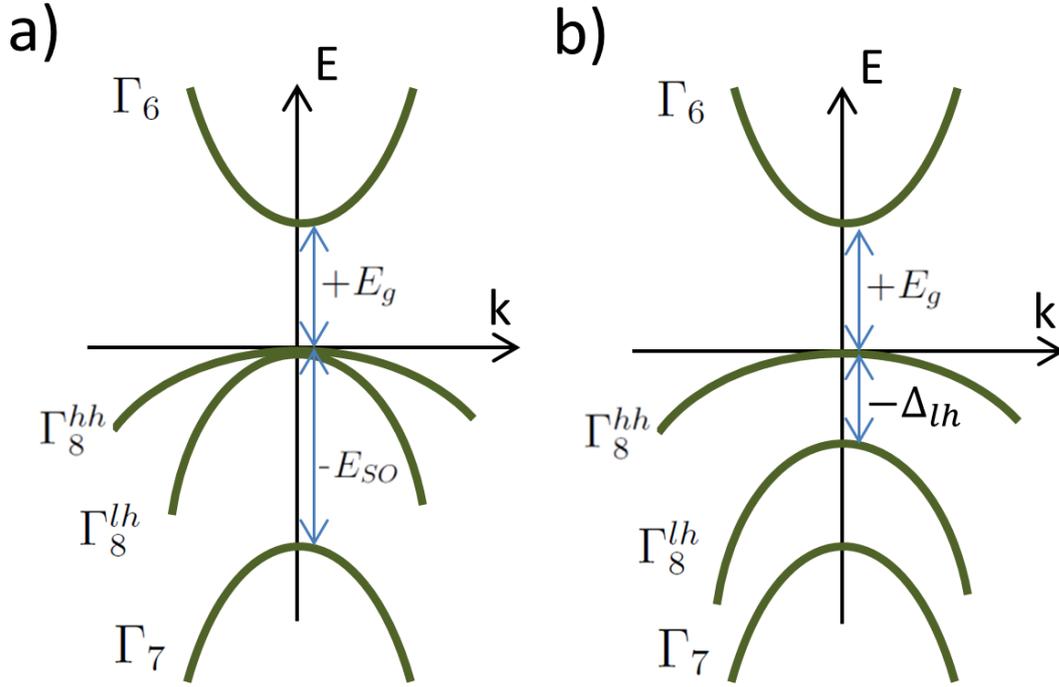


FIGURE 1.3 – a) Schéma de bandes dans le GaAs massif. Les bandes associées aux trous lourds (hh) et aux trous légers (lh) ont des courbures différentes à cause des masses effectives différentes de ceux-ci. b) Schéma de bandes dans un puits quantique. La levée de la dégénérescence en $\vec{k} = \vec{0}$ est de l'ordre de $\Delta_{lh} \sim 50$ meV. NB : ce schéma n'est pas à l'échelle puisque dans le GaAs : $E_g = 1,42$ eV et $E_{SO} = 0,34$ eV.

Pour simplifier l'écriture, on introduit la *masse effective* de l'électron m_n^* , telle que :

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_n^*} \quad (1.6)$$

La masse effective est généralement un tenseur de rang 3, qui permet d'introduire la correction à la courbure parabolique de la fonction $E = f(\vec{k})$, due à l'interaction entre les bandes. Les différentes masses effectives conduisent aux différentes courbures sur le diagramme de bandes (cf. figure 1.3.a). On étudie plus spécifiquement les bandes Γ_6, Γ_7 et Γ_8 , qui sont les plus proches du niveau de Fermi du GaAs. Les bandes $\Gamma_{7(8)}$ et Γ_6 sont séparées par un gap direct E_g . Les valeurs de ces paramètres dans les matériaux étudiés sont indiquées dans le tableau 1.4.

Interaction spin-orbite

On doit alors prendre en compte l'interaction spin-orbite des électrons, qui est importante dans les semi-conducteurs III – V. Cette interaction s'exprime grâce au hamiltonien : $\hat{H}_{SO} = \frac{\hbar}{4m_0^2 c^2} (\nabla(V_c) \times \hat{p}) \cdot \hat{S}$, où \hat{p} est l'impulsion de l'électron et \hat{S} son spin. Cette interaction provoque la levée de dégénérescence des bandes Γ_8 et Γ_7 , qui sont

Matériau	E_g (eV)	E_{SO} (eV)	m^* (Γ_6)	m^* (Γ_8^{hh})	m^* (Γ_8^{lh})
InAs	0,41	0,38	$0,023 m_0$	$-0,41 m_0$	$-0,026 m_0$
GaAs	1,42	0,34	$0,067 m_0$	$-0,34 m_0$	$-0,086 m_0$

FIGURE 1.4 – Énergie de gap E_g , écart spin-orbite E_{SO} , et masses effectives dans les différentes bandes dans GaAs et InAs. Données obtenues sur le site de l'Ioffe Institute.

Bande	Énergie	f.o. atomique	$ J, m_J\rangle$	Expression
Γ_6	$+E_g$	$ u_{1,0}\rangle$	$ \frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle_c$	$ S, \uparrow\rangle$
Γ_6	$+E_g$	$ u_{2,0}\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle_c$	$ S, \downarrow\rangle$
Γ_8^{hh}	0	$ u_{5,0}\rangle$	$ \frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{2}} X + iY, \uparrow\rangle$
Γ_8^{hh}	0	$ u_{6,0}\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{2}} X - iY, \downarrow\rangle$
Γ_8^{lh}	0	$ u_{3,0}\rangle$	$ \frac{3}{2}, +\frac{1}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{6}} X + iY, \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \uparrow\rangle$
Γ_8^{lh}	0	$ u_{4,0}\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{6}} X - iY, \uparrow\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} Z, \downarrow\rangle$
Γ_7	$-E_{SO}$	$ u_{7,0}\rangle$	$ \frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{3}} (X + iY, \downarrow\rangle + Z, \uparrow\rangle)$
Γ_7	$-E_{SO}$	$ u_{8,0}\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle_v$	$\frac{1}{\sqrt{3}} (X - iY, \uparrow\rangle + Z, \downarrow\rangle)$

FIGURE 1.5 – Fonctions de Bloch en $\vec{k} = \vec{0}$, pour les bandes de valence Γ_7, Γ_8 et de conduction Γ_6 .

alors séparées par une énergie *split-off* ($E_{SO} = 0,38$ eV dans l'InAs). De plus, elle provoque la levée de dégénérescence en $\vec{k} \neq \vec{0}$ des projections de moment cinétique total $m_J = \pm\frac{1}{2}$ et $m_J = \pm\frac{3}{2}$ dans Γ_8 . Comme on peut le voir sur le schéma 1.3.a, la bande associée à $m_J = \pm\frac{1}{2}$ possède une courbure plus importante, ce qui lui vaut son nom de bande de *trous légers* ; par opposition à la bande de *trous lourds*, $m_j = \pm\frac{3}{2}$.

À basse température, la bande *de valence* Γ_8 est remplie par N électrons, et la bande *de conduction* Γ_6 est vide (i.e. le matériau est isolant). Une excitation d'énergie supérieure au gap E_g permet de promouvoir un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Plutôt que de considérer les interactions des $N - 1$ électrons subsistant dans la bande de valence, il est préférable de considérer celle-ci comme pleine, et d'introduire une pseudo-particule correspondant à la lacune électronique. Ce *trou* aura alors une charge ($+e$), un quasi-vecteur d'onde, et une masse opposés à ceux de l'électron lacunaire.

1.2.2 États électroniques confinés dans un puits quantique

Afin d'introduire l'effet du confinement sur la structure électronique, nous étudions le cas simple du confinement en 2D produit par un puits quantique (cette modélisation peut s'appliquer à la couche de mouillage, qui subsiste après la nucléation des BQ). L'empilement de couches de matériaux de gaps différents provoque une modula-

tion supplémentaire, suivant l'axe de croissance z , du potentiel vu par l'électron. On prend en compte grâce à une modulation de la fonction d'onde $|\psi\rangle$ par une *fonction enveloppe* $\phi(\vec{r})$ (dont les variations, faibles à l'échelle atomique, se font à l'échelle de l'hétéro-structure) : $|\psi\rangle = \phi(\vec{r}) |u_{n,\vec{k}}\rangle$. Cette fonction enveloppe satisfait l'équation aux valeurs propres :

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m^*} + V_{PQ}(\vec{r})\right]\phi(\vec{r}) = \epsilon\phi(\vec{r}) \quad (1.7)$$

où $V_{PQ}(\vec{r})$ est le potentiel de confinement du puits quantique, dû à la différence de gap des matériaux. Si l'on considère le cas simple d'un puits de largeur $L_z \ll L_x, L_y$, présentant un confinement parfait suivant z ($\phi(x, y, -L_z/2) = \phi(x, y, +L_z/2) = 0$)⁴, alors on peut séparer la fonction enveloppe en $\phi(\vec{r}) = f(z)g(x, y)$, avec :

$$f(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin\left(\frac{n_z\pi}{L_z}z + \frac{n_z\pi}{2}\right) \quad (1.8)$$

$$g(x, y) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}_{\parallel}} \quad (1.9)$$

où n_z est un entier positif et $\vec{k}_{\parallel} = k_x \vec{u}_x + k_y \vec{u}_y$. On associe donc à la fonction enveloppe une énergie elle aussi séparable en deux contributions :

$$\epsilon = E_{n_z} + E_{\parallel} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m^* L_z^2} n_z^2 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m^*} \quad (1.10)$$

où la deuxième contribution provient de l'énergie cinétique de l'électron dans le plan (x, y) , qui évolue de façon continue. La première contribution E_{n_z} est l'énergie associée au confinement de la fonction enveloppe. Cette énergie peut prendre des valeurs discrètes (dans la limite de l'énergie du piège), dénotées par l'indice n_z . On remarque qu'elle dépend inversement de la masse effective, et ainsi on observe une levée de dégénérescence des énergies des trous lourds et légers même en $\vec{k} = \vec{0}$ dans les puits quantiques (cf. schéma 1.3.b). L'écart d'énergie Δ_{lh} entre Γ_8^{hh} et Γ_8^{lh} atteint plusieurs dizaines de meV, et se révèle crucial pour l'efficacité de l'orientation optique⁵.

Rôle des contraintes sur la structure de bande

Les contraintes sont souvent négligeables dans les matériaux massifs (mis à part lors de défauts d'alliage), mais jouent un rôle considérable dans les structures épitaxiées, comme les puits et boîtes quantiques. En effet, le tenseur des contraintes $\underline{\epsilon}$ est lié linéairement à une déformation du cristal (et donc au potentiel associé). Son influence sur les bandes de valence a été étudiée par Bir et Pikus [16]. Les termes dus aux contraintes

4. Dans ce traitement simple, on néglige la variation de la masse effective entre les matériaux, et on considère le puits comme étant de profondeur infinie.

5. En effet, les règles de sélection optique que nous verrons par la suite ne considèrent que la transition *fondamentale*, et n'incluent alors que les trous lourds. Ainsi, un photon σ_+ peut uniquement exciter une paire $|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle_c \otimes |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle_v$ et non une paire $|\frac{3}{2}, +\frac{1}{2}\rangle_c \otimes |\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle_v$, ce qui permet d'obtenir un taux de polarisation de spin plus élevé pour les porteurs de charge.

peuvent s'insérer dans la matrice obtenue par Luttinger et Kohn [84], donnant le couplage entre les bandes.

On restreint notre description aux états de valence de la bande Γ_8 , qui sont les plus affectés par les contraintes. Le hamiltonien dû aux contraintes peut alors s'écrire (dans la base $\{|\frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\rangle, |\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle, |\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle\}$) :

$$\hat{H}_{BP} = \begin{pmatrix} \Delta & R & 0 & S \\ R^* & 0 & S & 0 \\ 0 & S^* & \Delta & R \\ S^* & 0 & R^* & 0 \end{pmatrix} \quad (1.11)$$

où Δ , R et S dépendent des contraintes et des potentiels de déformation du matériau. Dès lors que $\epsilon_{zz} \neq \frac{\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}}{2}$ (ce qui est le cas dans les puits quantiques), le terme Δ est non nul, et vient augmenter la différence d'énergie entre les états de trous lourds et les états de trous légers. Si l'on considère l'anisotropie des contraintes, le terme R devient important, et si on prend en compte le cisaillement le long de l'axe de croissance (ϵ_{yz} et ϵ_{xz}) le terme S devient non négligeable.

Mélange de bande

Dans la couche de mouillage les termes R et S du hamiltonien (1.11) sont importants et couplent les bandes de trous lourds et de trous légers. Il en résulte que les états propres du système contraint sont des superpositions des états lourds et légers, qu'on obtient grâce à la diagonalisation du hamiltonien (1.11). En prenant en compte ce *mélange de bandes*, les nouveaux états de trous "pseudo-lourds" sont :

$$\widetilde{\left| \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle} = \frac{1}{\sqrt{1 + \beta^2 + \eta^2}} \left(\left| \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle + \beta^* \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + \eta \left| \frac{1}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle \right) \quad (1.12)$$

$$\widetilde{\left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle} = \frac{1}{\sqrt{1 + \beta^2 + \eta^2}} \left(\left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle + \beta \left| \frac{1}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle + \eta^* \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \right) \quad (1.13)$$

où β et η sont les coefficients du mélange, proportionnels aux potentiels de déformation et aux contraintes, respectivement dans le plan et transverses.

Les contraintes sont aussi importantes dans les BQ, et le mélange de bande dans celles-ci a fait l'objet de nombreuses études au sein de notre équipe, notamment lors de la thèse de Catherine Tonin [122], dont les expériences de polarisation de la luminescence ont permis d'évaluer $|\beta| \sim 0,2$ et $|\eta| \sim 0,1$ (dans des échantillons similaires à ceux étudiés dans ce manuscrit). L'influence du mélange de bandes sur la relaxation du spin de trou a aussi été étudiée théoriquement par C. Testelin et al.[120]⁶. Cependant, la prise en compte du mélange de bandes (et la complexification des calculs en résultant) n'a pas été jugée nécessaire dans l'analyse des résultats de cette thèse (comme souvent dans la littérature).

6. Comme mentionné dans le chapitre 4, cette étude a depuis été revisitée par Tartakovskii et al.[23] qui ont attribué un rôle déterminant des orbitales d dans les fonctions atomiques $|u_{5,0}\rangle$ et $|u_{6,0}\rangle$

1.2.3 Structure intra-bande dans les boîtes quantiques

Le calcul de la structure électronique exacte d'une BQ nécessite de connaître sa forme, sa composition, et les contraintes qui y règnent ⁷. Or ces paramètres ne sont pas accessibles dans le cas des BQ auto-assemblées, du fait de la relaxation aléatoire des contraintes et de l'inter-diffusion du gallium, entre autres. Sous certaines hypothèses, on peut cependant calculer la fonction enveloppe $\phi(\vec{r})$ des électrons dans la BQ : $|\psi_n\rangle = \phi(\vec{r}) |u_{n,0}\rangle$, qui obéit à l'équation aux valeurs propres :

$$\hat{H}_{BQ}\phi(\vec{r}) = \left[\frac{\hat{p}^2}{2m^*} + V_{BQ}\right]\phi(\vec{r}) = \varepsilon\phi(\vec{r}) \quad (1.14)$$

Si l'on suppose que la BQ a la forme de lentille aplatie décrite précédemment, et qu'elle possède une symétrie cylindrique autour de l'axe de croissance z (ce qui est une hypothèse forte), alors on peut séparer l'enveloppe en deux parties :

- le long de l'axe z , le confinement est assimilable à un puits quantique (dont la largeur prend en compte la couche de mouillage), et seul le premier état ($n_z = 1$) est confiné ;
- dans le plan (x, y) , le confinement est souvent considéré parabolique (afin d'avoir des solutions simples et de prendre en compte l'inter-diffusion), et sa symétrie permet de faire commuter \hat{H}_{BQ} et l'opérateur \hat{L}_z . Ainsi L_z est un bon nombre quantique pour les fonctions enveloppes dans le plan, et on utilise les notations de la physique atomique pour les désigner (S pour $L = 0$, P pour $L = 1$, ...).

Cette démarche a été mise en place par Marzin et Bastard [90], et leur a permis de calculer les énergies de confinement de BQ d'InAs/GaAs, de 10 nm de diamètre, pour 1,5 nm d'épaisseur. Pour les fonctions enveloppes des électrons de conduction ϕ_{n_z, L, L_z}^c (depuis le bas de la bande de conduction) :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{n_z=1, L=0, L_z=0}^c &= 420\text{meV} \\ \varepsilon_{n_z=1, L=1, L_z=\pm 1}^c &= 472\text{meV} \end{aligned}$$

De même, pour les états confinés dans la bande de valence, les énergies de confinement des fonctions enveloppes des trous lourds ⁸ ϕ_{n_z, L, L_z}^v (depuis le haut de la bande de valence) :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{n_z=1, L=0, L_z=0}^v &= 133\text{meV} \\ \varepsilon_{n_z=1, L=1, L_z=\pm 1}^v &= 185\text{meV} \end{aligned}$$

En suivant les dénominations de la physique atomique, on note : $S_l = \phi_{1,0,0}^i$ et $P_l = \phi_{1,1,\pm 1}^i$ avec $i = c, v$. On note dès maintenant qu'il y a un fort écart énergétique entre

7. On fait l'hypothèse que les BQ sont suffisamment espacées pour être considérées indépendantes.

8. On le rappelle, la différence de masse effective des trous lourds et légers crée une forte différence de leurs énergies de confinement. Les transitions associées aux enveloppes de trous légers sont alors à des énergies plus hautes de plusieurs dizaines de meV.

les fonctions enveloppes S et P (~ 50 meV). L'énergie correspondant à l'excitation d'un électron de valence d'enveloppe S_v (ou $\phi_{n_z=1, L=0, L_z=0}^v$) vers l'état de la bande de conduction d'enveloppe S_c (ou $\phi_{n_z=1, L=0, L_z=0}^c$), correspondant à la création d'une paire électron-trou dans l'état fondamental, est de l'ordre de 1,35 eV (ce qui correspond à une longueur d'onde de 910 nm).

1.2.4 Interaction coulombienne et corrections énergétiques

Cependant, on ne peut pas considérer les états d'électron et de trou indépendants, car ces deux particules interagissent via l'interaction coulombienne. Cette interaction est exaltée, à cause du fort recouvrement spatial des fonctions d'onde des deux particules. Ce recouvrement est plus important que dans le cas d'un *exciton*, à cause du fort confinement des charges dans la BQ (les dimensions latérales de la BQ sont de l'ordre de 10 nm, alors que le rayon de Bohr de l'exciton dans InAs est de 35 nm). Ainsi, le terme "exciton" est utilisé par abus de langage dans une BQ, là où l'expression 'paire électron-trou' est plus exacte.

L'état de charge d'une BQ peut être modifié grâce à une excitation laser, un dopage chimique, ou encore des structures de type Schottky [91, 37].

Interaction coulombienne directe

Une première contribution énergétique intervient quel que soit l'état de charge de la BQ, il s'agit de l'interaction coulombienne *directe* :

$$J = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{|\psi_e(\vec{r}_1)|^2 |\psi_h(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d^3r_1 d^3r_2 \quad (1.15)$$

où ϵ est la constante diélectrique effective de l'InAs. Cette interaction provient de l'interaction coulombienne au sens "classique", entre deux particules situées en \vec{r}_1 et \vec{r}_2 . Elle a pour effet d'abaisser de $J \approx 30$ meV l'énergie correspondant à la création d'une paire électron-trou [131]. Cette contribution abaisse aussi l'énergie des états à trois charges, les trions positif (X^+) et négatif (X^-), par rapport à l'état paire électron-trou (X^0) [37]. Enfin, dans le cas d'une double paire électron-trou (XX), elle est responsable de l'*énergie de liaison*, et réduit l'énergie du doublet XX de 3 meV [9] (bien que cette tendance puisse être inversée par recuit [126]).

Interaction d'échange électron-trou

Dans le cas des excitons neutres, X^0 une autre contribution énergétique intervient. Il s'agit de l'*interaction d'échange* :

$$J = \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \int \int \frac{\psi_e^*(\vec{r}_1) \psi_h^*(\vec{r}_2) \psi_e(\vec{r}_2) \psi_h(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (1.16)$$

Ce terme provient de l'indiscernabilité de la fonction d'onde électronique, et des processus d'échanges virtuels autorisés par celle-ci [16]. Il couple les paires électron-trou de

spins différents. Les quatre paires électron-trou possibles sont dénommées par la projection de leur moment cinétique total $|J_z^{tot}\rangle$, où $J_z^{tot} = J_z^h + S_z^e$ (voir équations (1.21)). On sépare généralement ce terme en deux contributions : une contribution courte portée (qui provient du recouvrement des parties atomiques des fonctions d'onde) et une contribution longue portée (qui provient du recouvrement des fonctions enveloppes).

- La contribution courte portée introduit une différence d'énergie δ_0^{cp} entre les états $|\pm 1\rangle$ et $|\pm 2\rangle$. De plus, elle induit un couplage⁹ δ_2^{cp} entre les états $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$ [8].
- La contribution longue portée apporte des contributions δ_0^{lp} et δ_2^{lp} aux énergies précédentes ; et dans le cas général d'une BQ ne présentant pas de symétrie cylindrique, elle amène un écart d'énergie δ_1 entre les états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$.

Les différentes contributions énergétiques de l'interaction coulombienne (représentées sur la figure 1.6) sont donc décrites par les hamiltoniens suivants (écrits dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$) :

$$\hat{H}_{directe} + \hat{H}_{change}^{cp} + \hat{H}_{change}^{lp} = \begin{pmatrix} -J & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -J & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -J & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -J \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0^{cp} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & +\delta_0^{cp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0^{cp} & \delta_2^{cp} \\ 0 & 0 & \delta_2^{cp} & -\delta_0^{cp} \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0^{lp} & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & +\delta_0^{lp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0^{lp} & \delta_2^{lp} \\ 0 & 0 & \delta_2^{lp} & -\delta_0^{lp} \end{pmatrix}$$

Les contributions courte et longue portées étant difficiles à séparer, on observe en général leur somme : $\delta_0^{cp+lp} \approx 200 \mu eV$ et $\delta_2^{cp+lp} \approx 10 \mu eV$ [8, 44].

L'énergie δ_1 , communément appelée *énergie de structure fine*, sera d'un intérêt central dans le chapitre 6 de ce manuscrit. Elle a fait l'objet de beaucoup d'études (car elle peut être adressée optiquement), et sa première observation expérimentale date de 1996 dans des BQ de GaAs [48]. Dans les BQ d'InAs/GaAs, elle peut prendre des valeurs variant entre 0 et 200 μeV [65, 123, 8]. Bien que δ_1 soit théoriquement nul pour des BQ isotropes dans le plan (x, y) , ce cas est rarement observé, car quand bien même la BQ présenterait une forme de symétrie cylindrique (D_{2v}), une anisotropie des contraintes peut dégrader la symétrie de son potentiel (en C_{2v}). De plus, Ivchenko et al. ont démontré en 1997, sous l'hypothèse de séparabilité des fonctions enveloppes, qu'une anisotropie de forme de seulement 10% suffisait à induire un δ_1 de 100 μeV [54].

9. On notera que ce couplage provient de l'absence de centre de symétrie de la maille du cristal, et donc il subsiste même si la BQ présente une symétrie de rotation D_{2v} .

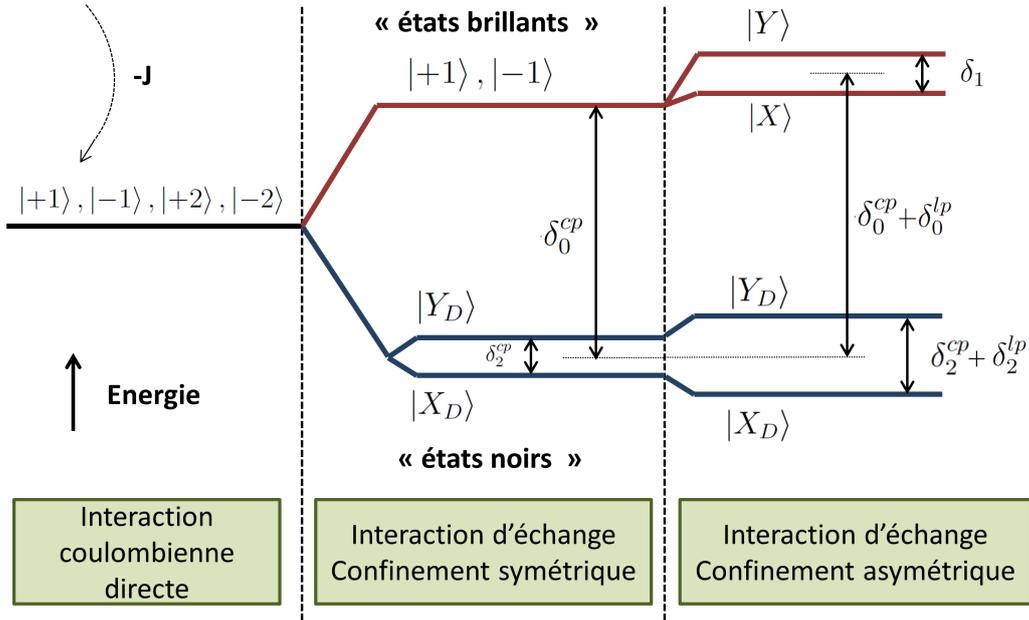


FIGURE 1.6 – Diagramme énergétique des levées de dégénérescence et des écarts énergétiques provoqués par l'interaction d'échange, sur les états à une paire électron-trou de plus basse énergie.

L'interaction d'échange joue donc un rôle important dans les BQ, et change ses états propres. Les nouveaux états propres, obtenus par la diagonalisation du hamiltonien total (1.17) s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 |X\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \\
 |Y\rangle &= \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \\
 |X_D\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle + |-2\rangle) \\
 |Y_D\rangle &= \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+2\rangle - |-2\rangle)
 \end{aligned}$$

où les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont polarisés linéairement, le long des axes cristallographiques $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$ ¹⁰. Nous nous intéressons spécifiquement dans le chapitre 6 aux états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ qui sont, comme nous allons le voir, les seuls qui interagissent avec la lumière.

1.3 Adressage optique et interaction avec la lumière

Les BQ sont particulièrement intéressantes pour leur propriétés optiques, et celles-ci sont cruciales pour les expériences menées au cours de cette thèse.

10. On note cependant que les contraintes et le mélange lourd-léger introduit précédemment, peuvent faire tourner ces axes de polarisation d'un angle de $10\text{-}30^\circ$ [122]

1.3.1 Hamiltonien d'interaction

On étudie ici l'interaction des niveaux électroniques avec un champ électrique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\omega t}$, dont l'amplitude est considérée constante au niveau de la BQ, au vue de la faible dimension de celle-ci par rapport à la longueur d'onde $\lambda \approx 915$ nm. Ce champ est équivalent à un potentiel vecteur $\vec{A} : \vec{E} = -\frac{d\vec{A}}{dt}$ (dans la jauge de Coulomb). Lors de l'application du champ (pendant l'impulsion laser), le système est soumis à $[\hat{H}(\vec{k} = \vec{0}) + \hat{H}_{BQ}]$ décrit précédemment, ainsi qu'au hamiltonien d'interaction :

$$\hat{H}_I = -\frac{e}{2m_0} \vec{p} \cdot \vec{A} + \frac{e^2 A^2}{2m_0} \quad (1.17)$$

où m_0 est la masse de l'électron libre et e sa charge. Le second terme peut être négligé, car il n'induit pas de transitions électroniques, et reste faible pour des champs modérés. Dans ce cas, on peut réécrire le hamiltonien :

$$\hat{H}_I = -\frac{e}{2m_0} \vec{p} \cdot \vec{A} \simeq -\vec{d} \cdot \vec{E} \quad (1.18)$$

où \vec{d} est le moment dipolaire de l'électron (de faible étendue spatiale ~ 10 nm par rapport à λ). Cette approximation dipolaire électrique sera utilisée au long de cette thèse, dans laquelle nous étudierons plus en détail la dynamique provoquée par le hamiltonien d'interaction pendant l'impulsion laser. Ce hamiltonien induit des transitions électroniques (i.e. la promotion d'électrons des états de valence vers les états de conduction), dont les probabilités sont régies par la règle d'or de Fermi :

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_f | \hat{H}_I | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) [n(E_f) - n(E_i)] \quad (1.19)$$

pour une transition d'un état $|\psi_i\rangle$ (d'énergie E_i) vers un état $|\psi_f\rangle$ (d'énergie E_f), n étant la distribution de Fermi-Dirac (pour un semi-conducteur à basse température $|n(E_i) - n(E_f)| \approx 1$). La fonction de Dirac $\delta(E_f - E_i - \hbar\omega)$ assure la conservation de l'énergie : le laser ne peut induire que des transitions dont l'énergie est égale à son énergie optique $\hbar\omega$. Les fonctions d'onde étant décrites dans le formalisme de la fonction enveloppe ($|\psi_j\rangle = |\phi_j\rangle |u_j\rangle$), le terme central régissant la transition s'écrit :

$$\langle \psi_f | \hat{H}_I | \psi_i \rangle = \langle \phi_f | \vec{d} \cdot \vec{E} | \phi_i \rangle \langle u_f | u_i \rangle + \langle u_f | \vec{d} \cdot \vec{E} | u_i \rangle \langle \phi_f | \phi_i \rangle \quad (1.20)$$

On peut alors en séparer deux contributions :

- Le premier terme, non nul pour $|u_i\rangle = |u_f\rangle$, est responsable des transitions **intra-bande**. L'électron reste dans la même bande, mais change de fonction enveloppe $|\phi\rangle$ (cf. figure 1.7.a).
- Le second terme est responsable des transitions **inter-bandes** $|u_i\rangle \neq |u_f\rangle$. On remarque que ce terme est non nul seulement si $|\phi_i\rangle$ et $|\phi_f\rangle$ ont la même parité. Ainsi, seules les transitions $S_v \leftrightarrow S_c$ et $P_v \leftrightarrow P_c$ sont autorisées (cf. figure 1.7.b).

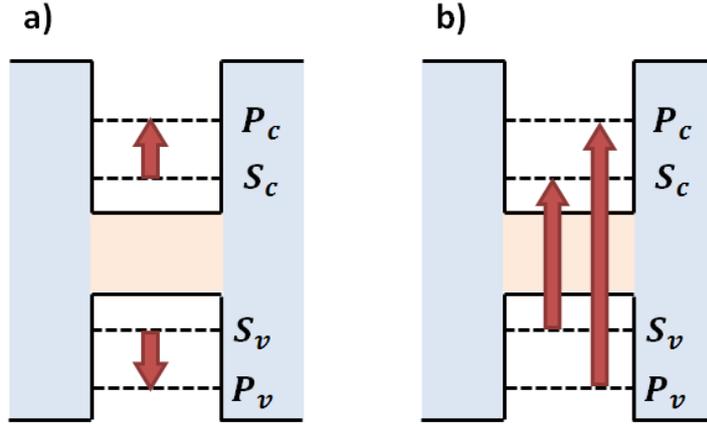


FIGURE 1.7 – a) Schéma représentant les transitions intra-bandes. b) Schéma représentant les transitions inter-bandes.

C'est la transition *fondamentale* entre les états d'enveloppes S_v et S_c qui va nous intéresser par la suite, car ce sont les états de plus basse énergie, donc les plus stables et les mieux confinés. Le facteur $\langle u_f | \vec{d} \cdot \vec{E} | u_i \rangle$ implique aussi des règles de sélection en polarisation sur les états $|u_j\rangle$ entre lesquels des transitions optiques sont possibles, comme nous allons le voir dans ce qui suit.

1.3.2 Règles de sélection optique

Le facteur $\langle u_f | \vec{d} \cdot \vec{E} | u_i \rangle$ est associé à l'excitation d'un électron des états de conduction et d'un trou dans les états de valence. Comme nous l'avons vu précédemment, l'interaction d'échange électron-trou change les énergies et les polarisations des états à une paire électron-trou dans les BQ. Dans le cas d'une BQ dopée n (resp. p), l'électron (resp. le trou) excité est dans un état de spin singulet avec l'électron (resp. le trou) résident, ce qui annule l'interaction d'échange. Nous étudions d'abord ce cas.

Boîtes quantiques dopées p

Dans les BQ dopées p (étudiées dans les chapitres 2, 3 et 4 de cette thèse), l'interaction d'échange est nulle, et les états électroniques gardent leur symétrie circulaire. L'excitation va changer les population de la BQ, et crée une paire électron-trou, en plus du trou résidant. On considère que la transition fondamentale se fait entre des états de valence purement lourds : $|h \uparrow (\downarrow)\rangle \equiv |J = 3/2, J_z = \pm 3/2\rangle$ (associés aux fonctions de Bloch $|u_{5(6)}\rangle$), et les états de conduction $|e \uparrow (\downarrow)\rangle \equiv |J = 1/2, J_z = \pm 1/2\rangle$ (associés aux fonctions de Bloch $|u_{1(2)}\rangle$). La paire électron-trou photo-excitée a alors quatre combinaisons de spin dégénérées, désignées par leur projection de moment angulaire total

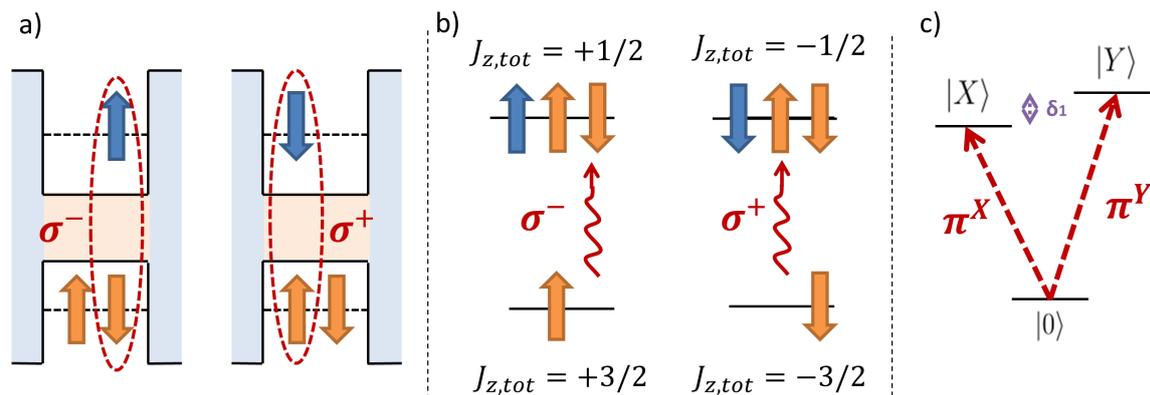


FIGURE 1.8 – a) Représentation des excitons photo-excités dans les BQ dopées p. b) Diagramme des excitations possibles dans les BQ dopées p. c) Diagramme représentant les excitations des paires électron-trou dans une BQ vide, présentant une structure fine δ_1 .

$$J_{z,tot} = J_z^e + J_z^h :$$

$$\begin{aligned} | +1 \rangle &= | e \downarrow \rangle \otimes | h \uparrow \rangle \\ | -1 \rangle &= | e \uparrow \rangle \otimes | h \downarrow \rangle \\ | +2 \rangle &= | e \uparrow \rangle \otimes | h \uparrow \rangle \\ | -2 \rangle &= | e \downarrow \rangle \otimes | h \downarrow \rangle \end{aligned}$$

Ces états sont couplés à la lumière via l'absorption de photons, dont le moment cinétique est $J_{z,photon} = \pm 1$ pour une polarisation σ^\pm . La conservation du moment angulaire total lors de l'absorption du photon implique : $J_{z,photon} = J_{z,tot}$. Ainsi, l'état $|+1\rangle$ est excité grâce à un photon polarisé σ^+ et l'état $|-1\rangle$ grâce à un photon σ^- (voir schéma 1.8).

En revanche, les états $|\pm 2\rangle$ ont des moments angulaires tels, qu'ils ne peuvent être couplés à la lumière (ni par absorption, ni par émission d'un photon), et ils sont appelés *états noirs*, par opposition aux états $|\pm 1\rangle$, appelés *états brillants*.

Les règles de sélection optique nous permettent ainsi de contrôler le spin des porteurs injectés dans les BQ, à partir de la polarisation du laser exciteur. Cependant, il ne faut pas oublier l'importance du porteur résident dans les BQ : le principe d'exclusion de Pauli prohibe l'absorption d'un porteur de spin égal au spin résident¹¹. Ainsi seule une BQ dans l'état de spin initial $|\uparrow (\downarrow)\rangle$ est couplée à l'état trion $|T \uparrow (\downarrow)\rangle$.

Boîtes quantiques non dopées

Dans les BQ non dopées, l'interaction d'échange électron-trou induit de nouveaux états propres pour les paires électron-trou, $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Ces états ont des dipôles linéaires

11. Ce principe peut générer des comportements contre-intuitifs, notamment lors de l'excitation hors résonance des BQ (sortant du cadre de cette thèse), qui peut donner une polarisation *négative* pour les BQ dopées n [74].

le long des axes cristallographiques $\vec{u}_x \equiv [110]$ et $\vec{u}_y \equiv [\bar{1}\bar{1}0]$, et se couplent donc aux polarisations optiques parallèles à ceux-ci. Aussi, les polarisations optiques qui sont une superposition de \vec{u}_x et \vec{u}_y (notamment celles $\vec{\pi}_{45} = (\vec{u}_x + \vec{u}_y)/\sqrt{2}$ et $\vec{u}_{\sigma+} = (\vec{u}_x + i\vec{u}_y)/\sqrt{2}$), créent un exciton qui est dans un état superposé : $|\Psi\rangle = a|X\rangle + b|Y\rangle$. Nous reviendrons plus en détail sur ces excitations dans le chapitre 6.

1.3.3 Couche de mouillage et continuum d'absorption

Toutes ces prédictions théoriques sur le couplage des BQ à la lumière peuvent être observées expérimentalement grâce aux expériences de photo-luminescence (avec un laser exciteur à une énergie constante) et d'excitation de la photo-luminescence (avec un laser exciteur à une énergie variable).

Les expériences d'excitation de la photo-luminescence réalisées par Y. Toda et R. Oulton [121, 102] montrent en effet les transitions inter-bandes $|S_v\rangle|u_v\rangle \leftrightarrow |S_c\rangle|u_c\rangle$ et $|P_v\rangle|u_v\rangle \leftrightarrow |P_c\rangle|u_c\rangle$ entre les états électroniques discrets de la BQ. Cependant, elles mettent aussi en avant l'existence d'un continuum d'absorption, non expliqué par la modélisation qui précède. Une explication est fournie par les calculs de Vasanelli et al. [131], qui ont calculé le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ d'une BQ d'In(Ga)As/GaAs, grâce à l'équation (1.19) et à la prise en compte de la couche de mouillage. Les calculs rendent cette fois compte à la fois des transitions discrètes ($|S_v\rangle \leftrightarrow |S_c\rangle$ et $|P_v\rangle \leftrightarrow |P_c\rangle$), et du continuum d'absorption. Ce continuum est dû à l'excitation de transitions *mixtes*, impliquant une charge confinée dans la BQ et la charge opposée contenue dans la couche de mouillage (cf. figure 1.9). Par exemple, la transition $WLh - 1Se$ désigne l'excitation d'un électron dans la BQ avec un trou confiné dans la couche de mouillage. Le trou possède alors deux degrés de liberté, et l'énergie cinétique associée explique l'observation d'un continuum. Il ne faut donc surtout pas négliger l'influence de la couche de mouillage dans l'étude des boîtes quantiques.

La couche de mouillage est souvent utilisée pour réaliser une excitation non résonante de la photo-luminescence des BQ d'InAs. En effet, les paires électron-trou excitées dans celle-ci (grâce à un laser $\lambda_{exc} \approx 870$ nm) sont ensuite capturées dans les pièges de potentiel que représentent les BQ. La luminescence à plus basse énergie, produite par leur recombinaison dans la BQ, peut alors être observée sans être gênée par le laser exciteur¹². Cependant, la mesure ne présente qu'une partie des transitions autorisées, et notamment la transition $|P_v\rangle \leftrightarrow |P_c\rangle$ n'est pas visible. En effet, le temps de relaxation $|P_j\rangle \rightarrow |S_j\rangle$ est très court (~ 5 ps) par rapport au temps de vie $T_1 \sim 500$ ps de la paire électron-trou dans son état fondamental¹³. Ce temps de vie T_1 est aussi res-

12. Et cependant conserver l'orientation optique du laser, si le temps de relaxation d'au moins un des porteurs de spin (électron ou trou) est suffisamment long par rapport à leur temps de capture dans la BQ.

13. Ce temps est aussi appelé *temps radiatif* (noté τ_{rad}) dans le cas où les processus de relaxation

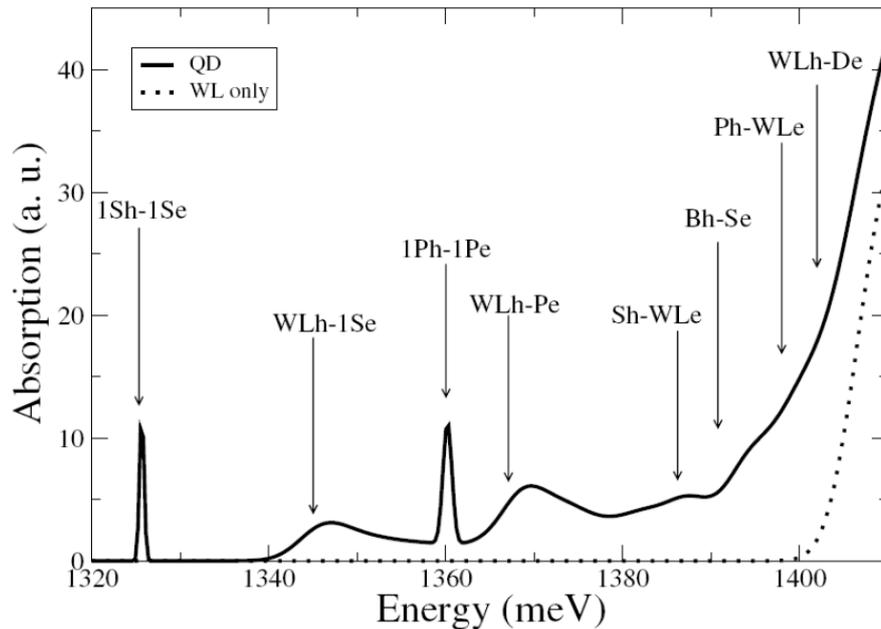


FIGURE 1.9 – Calcul de l'absorption, fait par Vasanelli et al. [131], pour une BQ cylindrique de diamètre 10 nm et de hauteur 2 nm. On observe clairement le continuum associé aux états délocalisés. Seul l'état 1Sh – 1Se est bien isolé de la couche de mouillage.

ponsable de l'élargissement *homogène* de la raie de luminescence associée à la transition visible en micro photo-luminescence¹⁴. Cet élargissement est à distinguer de l'élargissement *inhomogène* produit par la dispersion énergétique de l'ensemble de BQ excitées.

En effet, les BQ possèdent des énergies et des caractéristiques (T_1 , β , ...) qui diffèrent de manière importante. Il sera donc important de prendre en compte ces inhomogénéités lors de l'étude d'un ensemble. Cependant, toutes ces BQ présentent une propriété très intéressante : la forte isolation de la transition $|S_v\rangle \leftrightarrow |S_c\rangle$ (bien visible sur la figure 1.9), qui traduit un bon confinement de la paire électron-trou sur ces états. Ce confinement permet de l'isoler d'un certain nombre de mécanismes de relaxation, et permet une bonne conservation du spin des charges.

non radiatifs (tunnel d'une charge hors de la BQ,...) sont négligeables, et notamment lors d'une excitation résonante qui sera le cas au long de ce manuscrit.

14. La micro photo-luminescence (μPL) désigne l'observation de la photo-luminescence d'une zone suffisamment peu dense de l'échantillon, qui permet de distinguer les transitions associées à différentes BQ sans être limité par la résolution du spectromètre et la dispersion énergétique des BQ. La résolution du dispositif de photo-luminescence peut aussi être améliorée grâce à un montage confocal [122].

1.4 Dynamique de spin dans les boîtes quantiques

Le fort confinement des électrons et des trous dans les BQ inhibe fortement les mécanismes de relaxation du spin des porteurs qui ont lieu dans les matériaux massifs. Le temps de relaxation du spin est fortement allongé, mais il est alors limité par une nouvelle interaction : l'interaction hyperfine.

1.4.1 Relaxation du spin dans les semi-conducteurs massifs

Le spin de l'électron dans les semi-conducteurs massifs est conservé pendant un temps très court, car deux mécanismes provoquent sa relaxation lors de son mouvement.

Mécanisme d'Elliott-Yafet

Ce mécanisme intervient sur les électrons de la bande de conduction Γ_6 . Le couplage $\vec{k} \cdot \vec{p}$ de cette bande avec les bandes Γ_7 et Γ_8 , associé à l'interaction spin-orbite \hat{H}_{SO} , lève la dégénérescence des fonctions d'onde atomiques $|u_{j,\vec{k}} \uparrow\rangle$ et $|u_{j,\vec{k}} \downarrow\rangle$, dès que $\vec{k} \neq \vec{0}$. Or, un électron ayant un vecteur d'onde \vec{k}_1 non nul est dans une superposition de ces états de spins différents. Des phénomènes diffusifs, tels que l'interaction avec un phonon (acoustique ou optique) ou avec une impureté du cristal, provoquent un changement de vecteur d'onde : $\vec{k}_1 \rightarrow \vec{k}_2$. Même si ces processus sont indépendants du spin électronique, le changement de vecteur d'onde induit un changement de la répartition de la fonction d'onde dans la base des états atomiques de spins. La diffusion du vecteur d'onde, qui intervient sur une échelle temporelle de $\tau_{\vec{k}} \sim 10^{-12}$ s, provoque ainsi la relaxation du spin en un temps similaire $\tau_s \propto \tau_{\vec{k}}$ [1].

Mécanisme de Dyakonov-Perel

Ce mécanisme provient d'un terme supplémentaire de l'interaction spin-orbite, qui intervient uniquement dans les matériaux dont la maille cristallographique ne possède pas de centre d'inversion (telles les structures blende de zinc de l'InAs et du GaAs). Ce terme supplémentaire, appelé terme de Dresselhaus, s'écrit pour la bande de conduction :

$$\hat{H}_D = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e} + \Theta(\vec{\kappa} \cdot \vec{S}) \quad (1.21)$$

où le vecteur $\vec{\kappa}$ a une dépendance en k^3 telle que : $\kappa_z = k_z(k_x^2 - k_y^2)$, les autres composantes s'obtenant par permutation circulaire [34]. Ce terme peut être décrit comme un champ effectif $\vec{B}_{DP}(\vec{k})$ perpendiculaire à \vec{k} , qui provoque la précession du spin en un temps caractéristique τ_{DP} . L'orientation moyenne du spin est cependant conservée, et c'est uniquement la combinaison de ce champ effectif avec les phénomènes diffusifs qui provoque la relaxation du spin.

Le temps caractéristique $\tau_{\vec{k}}$ des phénomènes diffusifs, évolue avec la pureté du cristal et la température. Si le temps $\tau_{\vec{k}} > \tau_{DP}$, alors la relaxation du spin reste domi-

née par le mécanisme d'Elliott-Yafet. Cependant, si $\tau_{DP} \gtrsim \tau_{\vec{k}}$, alors le mécanisme de Dyakonov-Perel provoque une *marche aléatoire* du spin, qui contrôle sa relaxation. On a alors $\tau_s \sim \frac{\tau_{DP}^2}{\tau_{\vec{k}}}$; et c'est ce mécanisme qui sera dominant lorsque $\tau_{\vec{k}}$ est long [34] (i.e. à basse température).

Ces deux mécanismes de relaxation du spin électronique dépendent fortement du couplage spin-orbite et du vecteur d'onde \vec{k} . Dans les BQ, $\langle \vec{k} \rangle = \vec{0}$, et ces mécanismes sont absents. On observe en effet un allongement du temps de relaxation du spin, qui passe de $\tau_s \sim 10^{-12}$ s dans le massif [1] à $\tau_s \sim 10^{-5}$ s dans les BQ [71], soit un allongement de sept ordres de grandeur. Cette *mémoire* du spin rend les BQ particulièrement intéressantes pour des applications dans l'information quantique; cependant, elle reste limitée par l'interaction hyperfine du spin électronique avec les spins nucléaires de la BQ.

1.4.2 Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques

Dans les BQ, la fonction enveloppe de l'électron est confiné sur $N \sim 10^5$ atomes. Ces atomes ont un spin nucléaire ($I_{In} = 9/2$ et $I_{As} = 3/2$), avec lequel le spin électronique se couple, via l'interaction hyperfine. Cette interaction est généralement considérée comme faible dans les matériaux massifs, mais elle prend de l'importance dans les BQ, dans lesquelles l'électron est couplé à un faible nombre de spins nucléaires, qui ont un long temps de conservation de leur orientation $\tau_I \sim 10^{-3}$ s [1]. Nous reviendrons en détail sur l'interaction hyperfine dans le chapitre 4, mais nous en présentons les grandes lignes dès maintenant ¹⁵.

Hamiltonien hyperfin et propriétés principales

Les électrons possèdent un moment magnétique $\vec{\mu}_e = g_e \mu_B \vec{S}_e$, où $\mu_B \simeq 57,9 \mu eV.T^{-1}$ est le magnéton de Bohr, et g_e est le facteur de Landé de l'électron. Ce moment magnétique électronique se couple avec le champ produit par les moments magnétiques nucléaires $\vec{\mu}_I = \mu_I \vec{I}$ (où μ_I dépend de l'atome considéré). L'interaction d'un électron et d'un noyau s'écrit sous la forme du hamiltonien [1, 25] :

$$H_{hf} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \left(-\frac{2\mu_B}{r^3} \vec{L} \cdot \vec{\mu}_I + \frac{1}{r^3} [3(\vec{\mu}_I \cdot \vec{e}_r)(\vec{\mu}_e \cdot \vec{e}_r) - \vec{\mu}_I \cdot \vec{\mu}_e] + \frac{8\pi}{3} \vec{\mu}_I \cdot \vec{\mu}_e \delta(r) \right) \quad (1.22)$$

où $\vec{r} = r\vec{e}_r$ est le vecteur qui repère la position de l'électron par rapport au noyau, et \vec{L} est le moment orbital de l'électron. Ce hamiltonien contient trois termes distincts :

- Le premier terme est responsable de l'interaction entre le moment cinétique de l'électron et le moment magnétique du noyau. Il est nul pour les électrons de conduction ($L = 0$ dans la bande Γ_6).

¹⁵. Le traitement de Merkulov et al. du déphasage dû aux fluctuations du champ nucléaire sera notamment nécessaire dès les chapitres 2 et 3.

- Le deuxième terme est l'interaction dipôle-dipôle des moments magnétiques, qui se fait à distance.
- Le troisième terme est l'interaction des dipôles la plus importante, qui a lieu uniquement en $r = 0$, c'est-à-dire lorsque l'électron est au contact du noyau.

C'est ce *terme de contact* qui est dominant dans le cas de l'électron de conduction, dont la fonction d'onde atomique $|u_c\rangle$, de symétrie s , présente un pic important en $r = 0$. L'énergie associée à l'interaction hyperfine est alors $\langle \psi_e | H_{hf}^c | \psi_e \rangle = -\frac{2}{3}\mu_0\vec{\mu}_I\vec{\mu}_e|\psi_e(0)|^2$, et on peut écrire l'interaction avec uniquement le terme de contact :

$$H_{hf}^c = -\frac{4}{3}\mu_0\mu_I\mu_B|\psi_e(0)|^2\vec{S}\cdot\vec{I} = +A|\phi(0)|^2\vec{S}\cdot\vec{I} \quad (1.23)$$

où on définit la *constante hyperfine* : $A = (-\frac{4}{3}\mu_0\mu_B\frac{\mu_{I,\alpha}}{I_\alpha}|u_\alpha(0)|^2)$.

On peut immédiatement remarquer deux propriétés de cette expression :

- La force du couplage avec le noyau dépend de l'espèce atomique α considérée (via A_α^e), et du module de la fonction enveloppe au niveau de ce noyau (i.e. l'interaction avec les noyaux au centre de la BQ est plus forte que sur les bords).
- Cette interaction, qui peut se réécrire : $H_{hf}^c = A|\phi(0)|^2(S_z^e I_z + \frac{S_+ I_- + S_- I_+}{2})$, permet un décalage énergétique de type Zeeman de l'électron (via le premier terme), et un transfert de polarisation entre les spins électroniques et nucléaires (via le deuxième terme, dit de *flip-flop*) qui est responsable de polarisation nucléaire dynamique.

Nous reviendrons amplement sur ces deux points dans le chapitre 4 de ce manuscrit. Nous nous contenterons ici d'une description semi-classique de l'influence de l'ensemble des noyaux de la BQ sur l'électron localisé :

$$H_{hf}^c = \sum_j A_j |\phi(0)|^2 \vec{S}\cdot\vec{I}_j = g_e\mu_B\vec{S}\cdot\vec{B}_n \quad (1.24)$$

où $\vec{B}_n = \frac{1}{g_e\mu_B} \sum_j A_j |\phi(0)|^2 \vec{I}_j$ est le champ magnétique nucléaire agissant sur l'électron, et produit par l'ensemble des noyaux. On l'appelle communément *champ Overhauser*. L'électron génère un champ réciproque, appelé *champ Knight* (estimé à 6 mT[73]), qui provoque une précession des spins nucléaires sur une échelle de temps de la μs ¹⁶. Sur des échelles de temps plus faibles, on pourra considérer que le champ nucléaire est de direction et de magnitude fixes (on parle de champ nucléaire *gelé*).

Interaction hyperfine du trou

Avant de traiter les fluctuations de la polarisation des spins nucléaires, il convient de traiter l'interaction hyperfine de ceux-ci avec le spin du trou dans une BQ. Comme

16. Il s'agit ici d'une description largement simplifiée, du fait de son caractère semi-classique, qui ne prend pas en compte le comportement individuel des spins nucléaires.

mentionné précédemment, la symétrie p de la partie atomique de la fonction d'onde du trou, rend nul le terme de contact de l'interaction hyperfine. Cependant, l'interaction ne peut pas être complètement négligée à cause de la partie dipolaire du Hamiltonien hyperfin d'une part, et du caractère mélangé de la fonction d'onde du trou d'autre part. En effet, le mélange de bande du trou (caractérisé par le paramètre β défini dans l'introduction), implique qu'une partie de sa fonction d'onde aura la symétrie de la bande des trous légers.

Une nouvelle expression de l'interaction hyperfine a été établie au sein de notre équipe par Testelin et al. en 2009 [120], et a permis d'établir une équation plus générale pour l'interaction hyperfine (valable pour l'électron ou le trou lourd, ou léger) :

$$H_{hf} = \eta_0 \sum_j M_j |\phi(\vec{r}_j)|^2 [\alpha(I_+^j S_- + I_-^j S_+) + I_z^j S_z] \quad (1.25)$$

Pour les trous lourds $\alpha = |\beta|/\sqrt{3}$ est un paramètre d'anisotropie, et M_j est une constante hyperfine. Dans le cas de l'électron de conduction, $M_j \equiv A_j$ défini précédemment, et $\alpha = 1$ (ce qui implique l'isotropie de son Hamiltonien). Ce Hamiltonien permet de faire deux observations :

- l'intensité de l'interaction, représentée par la constante hyperfine M_j , est d'un ordre de grandeur plus faible pour le trou que pour l'électron (cf. tableau 4.1). Ceci a été confirmé par des observations expérimentales au sein de notre équipe et d'autres [36, 24, 41].
- le Hamiltonien est anisotrope, et seule la partie *légère* de la fonction d'onde du trou mélangé ($\alpha \neq 0$) va introduire les termes transverses permettant les mécanismes flip-flop (et ainsi le déphasage de la précession du spin du trou par le bain nucléaire [36], ...).

Ce modèle a récemment été remis en question par Tartakovskii et al. [23], qui on pris en compte l'hybridation de la fonction d'onde atomique du trou lourd avec les orbitales d . La remise en question, par ce modèle atomistique, de la symétrie p implique la prise en compte des termes non diagonaux (flip-flop), qui vont avoir une influence comparable à celle d'un mélange lourd-léger de 30%. Cependant leurs mesures ne remettent pas en question l'ordre de grandeur précédemment obtenu ($\frac{H_{hf}^h}{H_{hf}^e} \sim 10\%$), et mettent en avant les signes opposés des constantes hyperfines du trou dans l'indium et le gallium (négatives) et de l'arsenic (positive) qui permet une atténuation supplémentaire du couplage longitudinal (suivant z) du trou aux noyaux.

Dans nos échantillons, le mélange de bande (mesurée par Tonin et al. en 2012 [123]) reste faible ($\beta \approx 0.2$), mais c'est avant tout la faiblesse des constantes hyperfines qui vont nous permettre de négliger l'influence du trou par rapport à celle de l'électron dans la polarisation nucléaire dynamique.

L'interaction hyperfine a cependant une influence non-négligeable sur la dynamique du spin du trou car, comme pour l'électron, les fluctuations de la polarisation des spins nucléaires, vont provoquer son déphasage.

Fluctuations du champ nucléaire et déphasage du spin

On présente ici le modèle développé par Merkulov et al. en 2002[92] qui traite du déphasage du spin électronique par les spins nucléaires ; ce modèle est valable pour le spin du trou, comme montré par Testelin et al.[120], bien que le couplage soit plus faible d'un ordre de grandeur.

On considère un ensemble de BQ dont la polarisation nucléaire moyenne est nulle. Le champ nucléaire présente cependant des fluctuations aléatoires au sein de la BQ (à l'échelle de la microseconde) et d'une BQ à l'autre, caractérisées par l'écart type :

$$\sigma_n = \sqrt{\langle (\vec{B}_n)^2 \rangle - (\langle \vec{B}_n \rangle)^2} \quad (1.26)$$

où le deuxième terme est nul (dans les conditions décrites ici). Le premier terme peut s'écrire : $\langle (\vec{B}_n)^2 \rangle = \frac{1}{(g_e \mu_B)^2} \langle (\sum_j A_j \vec{I}_j)^2 \rangle$. Or si la polarisation moyenne est nulle, il en va de même pour les corrélations des spins nucléaires : $\langle I_k I_l \rangle = \delta_{kl} I_k (I_k + 1)$. On simplifie le problème en considérant la fonction enveloppe équi-répartie sur les N noyaux de la BQ, et on a alors :

$$\sigma_n^2 = \frac{4}{(g_e \mu_B)^2} \frac{1}{N} \sum_{\alpha} x_{\alpha} (A_{\alpha})^2 I_{\alpha} (I_{\alpha} + 1) \quad (1.27)$$

où x_{α} est la fraction de l'élément α dans la composition de la BQ. En utilisant les paramètres usuels ($N = 10^5$, $x_{Ga} = x_{In} = 0,5$, $g_e \sim 0,5$, et $A = 50 \mu eV$), on évalue $\sigma_n \sim 60$ mT.

On considère maintenant un ensemble de BQ contenant chacune un électron. Les spins électroniques précessent autour de champs nucléaires différents d'une BQ à l'autre, ce qui provoque leur déphasage. Dans ce modèle, on considère que le champ \vec{B}_n est vu comme un champ *classique* par l'électron. Sa dynamique suit alors l'équation :

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \vec{\omega}_e \times \vec{S} \quad (1.28)$$

où $\vec{\omega}_e = \frac{g_e \mu_B}{\hbar} \vec{B}_n$, de direction \vec{n} . L'évolution du spin électronique s'écrit alors :

$$\vec{S}(t) = [\vec{S}_0 \cdot \vec{n}] \vec{n} - [\vec{S}_0 \times \vec{n}] \sin(\omega_n t) + [\vec{S}_0 - (\vec{S}_0 \cdot \vec{n}) \vec{n}] \cos(\omega_n t) \quad (1.29)$$

où $\vec{S}_0 = \vec{S}(t=0)$ est le spin initial. Afin de prendre en compte la dispersion du champ nucléaire d'une BQ à l'autre, on intègre cette dynamique sur la densité de probabilité du champ nucléaire. On considère celle-ci comme gaussienne :

$$P(\vec{B}_n) = \frac{1}{(\frac{2}{3}\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_n^3} \exp\left(-\frac{2(\vec{B}_n)^2}{3\sigma_n^2}\right) = \frac{1}{\pi^{3/2} \Delta_n^3} \exp\left(-\frac{(\vec{B}_n)^2}{\Delta_n^2}\right) \quad (1.30)$$

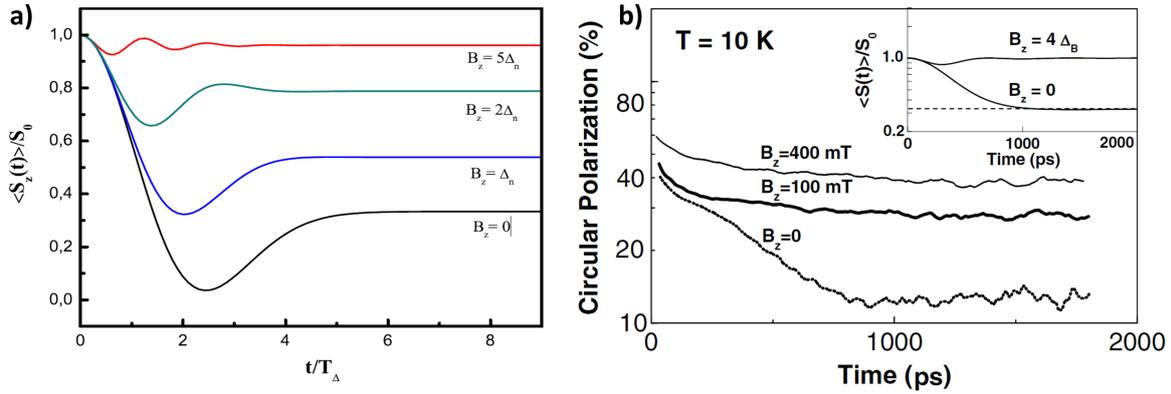


FIGURE 1.10 – a) Évolution de la polarisation de spin, prévue théoriquement par Merkulov et al., sous l'application de différents champ longitudinaux B_z [47]. b) Expérience menée par Braun et al. en 2005 [18]. Les dispersions de l'échantillon ne permettent pas de retrouver la forme prédite théoriquement. Cependant l'application d'un champ $\sim \Delta_n$ permet effectivement de prolonger la polarisation moyenne des spins électroniques.

où $\Delta_n^2 = \frac{2}{3}\sigma_n^2$. Sur l'ensemble des BQ, le spin prend une valeur moyenne : $\langle \vec{S}(t) \rangle = \int P(\vec{B}_n) \vec{S}(t) d^3 \vec{B}_n$, dont la composante suivant l'axe d'initialisation $\vec{n} \equiv \vec{z}$ est :

$$S_z(t) = \frac{S_0}{3} \left[1 + 2 \left(1 - 2 \left(\frac{t}{2T_\Delta} \right)^2 \right) \right] \exp \left(- \frac{t^2}{(2T_\Delta)^2} \right) \quad (1.31)$$

où on a défini $T_\Delta = \frac{\hbar}{g\mu_B \Delta_n} \sim 1$ ns, temps caractéristique du déphasage de l'ensemble de spins. On remarque que ce temps est effectivement petit par rapport aux constantes de temps d'évolution du champ nucléaire ($1\mu\text{s}$ pour la précession autour du champ Knight et $100\mu\text{s}$ pour la dépolarisation due à l'interaction dipôle-dipôle), ce qui confirme l'hypothèse des auteurs, selon laquelle on peut considérer le champ nucléaire gelé. Sur une échelle de temps faible par rapport à l'évolution du champ nucléaire ($\sim 1\mu\text{s}$), la composante $\langle S_z(t) \rangle$ se déphase rapidement, marque un "creux" à $t \approx 2T_\Delta$, avant d'atteindre un plateau à $1/3$ de sa valeur initiale.

Merkulov et al. ont aussi calculé l'évolution de $S_z(t)$ en présence d'un champ extérieur \vec{B}_z^{ext} . La précession du spin se fait alors autour du champ total $\vec{B}_t = \vec{B}_z^{ext} + \vec{B}_n$. Dès que le champ extérieur devient grand devant Δ_n , les fluctuations nucléaires sont écrantées, car la composante \vec{B}_n ne représente alors qu'une faible variation du vecteur de précession d'une BQ à l'autre. Un champ extérieur faible $\vec{B}_z^{ext} \sim 100$ mT suffit donc à rétablir un fort taux de polarisation (cf. figure 1.10.a) dans les BQ d'InAs.

Mise en évidence expérimentale

Ces prévisions théoriques¹⁷ ont depuis été confirmées par les expériences de Braun et al. en 2005 [18]. Ce groupe a étudié un ensemble de BQ d'InAs, dopées chimiquement

17. On notera que les résultats de Merkulov et al. ont été redémontrés par Kozlov [67], dans un formalisme quantique prenant en compte le retournement des spins (mécanismes flip-flop).

p , excitées grâce à un laser pulsé à l'énergie de la couche de mouillage. Après excitation d'un trion T^+ , les trous sont dans un état singulet, et la polarisation circulaire de l'émission du trion (observée suivant l'axe z) est proportionnelle au spin électronique le long de l'axe z : $P_c(t) \propto -2\langle S_z^e(t) \rangle$. Les résultats obtenus (présentés sur la figure 1.10.b) montrent bien les trois caractéristiques majeures du modèle de Merkulov : un déphasage rapide en $2T_\Delta$, une stabilisation de la polarisation à un tiers de sa valeur initiale, et un écrantage du déphasage grâce à l'application d'un champ faible ($B_z^{ext} \simeq 100$ mT).

On notera que le temps mesuré $T_\Delta \approx 470 \pm 170$ ps, est conforme avec l'ordre de grandeur prédit par le modèle, mais qu'on n'est pas en mesure d'observer le creux de polarisation. Cet écart de l'expérience avec le modèle provient du fait que celui-ci considère les fluctuations du champ nucléaire dans un ensemble de BQ identiques. Or les BQ ont une composition (x_{Ga}), une taille (et donc un nombre d'atomes N), et des facteurs de Landé (g_e) qui diffèrent. Ces fluctuations élargissent la distribution des champs nucléaires, et accélèrent le déphasage et *lissent* la dynamique de l'ensemble. Enfin, on note que les implications fortes du modèle de Merkulov peuvent être vérifiées sur une BQ unique (comme il a été fait par Eble et al. [37] ou Dou et al. en 2011 [33]), par des expériences de micro-photoluminescence résolues en temps. Dans la mesure où le temps d'acquisition est beaucoup plus long que le temps de corrélation du champ nucléaire ($\sim 1\mu s$), le champ nucléaire de la BQ connaît des fluctuations aléatoires pendant la mesure, et conduit à une précession différente pour chaque électron photo-excité. Le résultat obtenu par l'observation *longue* d'une BQ, est alors identique à celui obtenu sur un ensemble de BQ.

1.5 Applications et motivations du travail de thèse

La longue durée de vie du spin de l'électron, et plus particulièrement du trou, dans une BQ laisse envisager de longs temps de cohérence, qui pourraient faire d'une BQ un bon candidat en vue de la réalisation d'un qubit. Dans cette optique, l'étude menée au cours de cette thèse, sur le temps de cohérence, les interactions avec les noyaux, et la manipulation de la cohérence excitonique dans les BQ, est cruciale.

1.5.1 Qubits à base de spin

L'intérêt des qubits repose sur le stockage quantique de l'unité d'information, avec laquelle on peut réaliser des opérations logiques (analogues à celles des ordinateurs binaires). Le qubit doit présenter une fonction d'onde qui est une superposition cohérente de deux états orthogonaux : $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$, et qu'on peut représenter sur la sphère de Bloch (cf. figure 1.11). La superposition des états est la propriété cruciale du Qubit, et permet la mise en place de protocoles de cryptographie inviolables (comme le protocole BB84 [11]), ainsi que la téléportation de l'information (grâce au paradoxe

Système	T_{coh} (s)	T_{op} (s)	N_{op}	Conditions expérimentales
Ions piégés	10	10^{-7}	10^8	Pièges électrostatiques
Centres NV	1	10^{-6}	10^6	Température ambiante
Supraconducteur	10^{-5}	10^{-8}	10^3	Température \sim mK
Exciton dans les BQ	10^{-9}	10^{-12}	10^3	4K
Spin électronique dans les BQ	10^{-6}	10^{-12}	10^6	4K
Spin nucléaire dans les BQ	1	10^{-3}	10^3	Température ambiante

FIGURE 1.12 – Tableau présentant les principaux systèmes physiques proposés pour la réalisation de qubits et leurs caractéristiques : temps de cohérence T_{coh} , temps d'opération T_{op} , et nombre d'opérations réalisables avant la décohérence N_{op} . On mentionne aussi certaines conditions expérimentales.

EPR).

La conservation de la cohérence du qubit est cependant extrêmement délicate, car des interactions avec l'environnement conduisent le système à se projeter sur un des états propres ($|0\rangle$ ou $|1\rangle$) et limitent ainsi le temps de cohérence T_2 . Afin de rallonger le temps de cohérence du qubit, il est nécessaire que les états sur lesquels il est encodé soient très bien isolés de l'environnement.

Les réalisations de qubits les plus abouties à ce jour (voir tableau 1.12), reposent sur des ions piégés [19], ou des jonctions Josephson dans les supraconducteurs [104]. Cependant, elles nécessitent de lourds dispositifs (pièges électrostatiques, températures mK, ...), et les temps de cohérence relativement longs (~ 1 s) qu'elles présentent sont en partie dus au faible écart énergétique entre $|0\rangle$ et $|1\rangle$, ce qui allonge le temps nécessaire pour les opérations logiques.

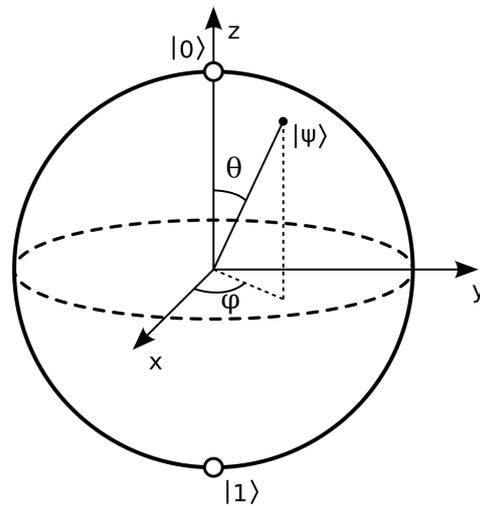


FIGURE 1.11 – Sphère de Bloch, représentée avec l'état : $|\psi\rangle = \cos(\theta)|0\rangle + \sin(\theta)e^{i\phi}|1\rangle$

L'utilisation d'"atomes artificiels" comme les BQ d'InAs/GaAs paraît alors une solution intéressante (suivant la proposition de Loss en 1998 [82]). Même si leur croissance n'est pas encore bien maîtrisée, la lithographie de cavités et de guides d'onde associés progresse vite [50, 80, 96] et permet leur adressage optique (et des opérations

très courtes) à des longueurs d'onde bien maîtrisées. En contrepartie, leur encapsulation dans un cristal massif les couple à leur environnement (couche de mouillage, impuretés, phonons, ...), ce qui limite fortement leurs temps de cohérence. Les deux principales propositions de réalisations de qubit avec des BQ sont :

- La présence/absence d'un exciton dans la BQ. L'état fondamental de la BQ vide représente l'état $|0\rangle$, et l'état excité de la BQ contenant un exciton représente $|1\rangle$. Le qubit peut alors être contrôlé grâce à l'excitation cohérente des oscillations de Rabi [96, 5]. Cependant, le temps de cohérence est limité par le temps de vie radiatif de l'excitation ~ 1 ns.
- L'état de polarisation du spin d'une charge résidente dans la BQ (qu'on peut adresser optiquement grâce aux règles de sélection). Dans ce cas, les états utilisés sont les états propres de spin : $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$.

Dans ce dernier cas, la cohérence du qubit serait limitée par l'interaction du spin de la charge confinée avec les spins nucléaires. Ce couplage hyperfin étant dix fois moindre dans le cas du trou, on peut supposer que son temps de cohérence sera plus important que celui de l'électron. Le spin d'un trou confiné dans une BQ d'InAs/GaAs serait donc un bon candidat pour la réalisation d'un qubit [61].

1.5.2 Motivations

Comme expliqué précédemment, les temps de cohérence T_2 et de relaxation T_1 sont cruciaux en vue de la réalisation d'un qubit. C'est précisément l'étude de ces temps et de leur processus limitant qu'on se propose de faire dans cette thèse, grâce à des expériences pompe-sonde résolues en temps, sur des BQ d'InAs/GaAs.

Après le chapitre 2 présentant le dispositif expérimental, nous verrons dans le chapitre 3 comment créer une superposition cohérente d'états de spin dans les BQ en champ magnétique transverse. Grâce à une technique sophistiquée de blocage de phase, nous nous affranchirons des inhomogénéités afin de mesurer le temps de cohérence T_2 du spin du trou.

Dans le chapitre 4, nous étudierons les mécanismes de la polarisation nucléaire dynamique dans les BQ, qui pourrait permettre un allongement du temps de relaxation T_1 du spin électronique. Et nous présenterons des résultats originaux qui mettent en jeu des processus de polarisation nucléaire nouveaux.

Dans le chapitre 5, nous présenterons le dispositif pompe-sonde à détection hétérodyne réalisé pendant cette thèse. Enfin dans le chapitre 6, nous étudierons la manipulation de la cohérence excitonique des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ d'une BQ non-dopée, et son déphasage dû à l'application d'un champ magnétique longitudinal.

Chapitre 2

Dispositif expérimental pompe-sonde

Ce chapitre présente une des configurations du dispositif expérimental utilisé durant cette thèse, ainsi que les conditions dans lesquelles sont réalisées les expériences. Au dispositif déjà présent lors de mon arrivée au laboratoire, nous avons au cours de cette thèse, apporté des améliorations. Dans le même temps, nous avons aussi mis en place une seconde expérience, équipée d'une détection hétérodyne (présentée dans le chapitre 5).

Nous décrirons d'abord le dispositif expérimental et ses atouts, avant de présenter les conditions expérimentales typiques, et enfin de présenter un signal "standard" d'un ensemble de BQ dopées, analysé grâce à la théorie de déphasage de spins dans un champ nucléaire fluctuant.

2.1 Dispositif expérimental pompe-sonde

2.1.1 Intérêt des expériences pompe-sonde

Les expériences de transmission/réflexivité en configuration pompe sonde (*PS*) sont considérablement plus difficiles à mettre en place que les expériences de photoluminescence (notamment à cause de la présence de deux faisceaux, de l'introduction d'un décalage temporel entre leurs impulsions, de la mesure d'un signal faible sur un fond non nul...). Quels sont donc les intérêts comparatifs de ces expériences ?

Les expériences pompes sondes ont tout d'abord deux intérêts spécifiques :

- Elles vont permettre d'exciter le système à la résonance des transitions énergétiques étudiées, de façon plus simple qu'en luminescence.
- Elles vont permettre d'obtenir un signal associé aussi bien à l'état excité qu'à l'état fondamental. Ceci permet d'étudier le signal associé à une charge résidente d'une BQ (et pas uniquement à un état détecté grâce à sa recombinaison radiative), grâce à l'interaction de celle-ci avec la sonde (cf. partie 2.2).

De plus, elles sont réalisées dans le cadre de l'optique impulsionnelle. Nous utilisons ici des impulsions, qui ont une enveloppe temporelle lorentzienne, d'une durée de 2-6 ps, soit une extension en énergie de 0,5-1 meV.

- Premier intérêt : cette largeur spectrale non négligeable (associée à l'accordabilité du laser sur une large gamme spectrale), va nous permettre d'exciter simultanément et de façon cohérente, deux états quantiques dont la séparation en énergie est inférieure à cette largeur spectrale (cf chapitre 6).
- Deuxième point, lors des expériences PS, leur faible durée permet d'avoir une bonne résolution temporelle des dynamique observées. Plus important dans notre cas, cette résolution temporelle permet de faire apparaître clairement la phase de phénomènes cohérents.

Alors que ces avantages peuvent être utilisés en photoluminescence à excitation impulsionnelle, les expériences pompes sondes ont deux intérêts spécifiques :

- elles permettent d'exciter le système à la résonance des transitions énergétiques étudiées, sans que cela ne gêne la détection
- elles permettent d'obtenir un signal associé à une charge résidente d'une BQ (et pas uniquement à un état détecté grâce à sa recombinaison radiative), grâce à l'interaction de celle-ci avec la sonde (cf. partie 2.2)

En contrepartie, les montages PS imposent quelques complications expérimentales, et de modélisation car on doit prendre en compte l'enveloppe temporelle des impulsions, et les puissances crête importantes peuvent exciter des phénomènes (acoustiques ou thermiques) indésirables.

2.1.2 Dispositif expérimental

Dans cette expérience, nous utilisons un laser Ti :Saphir impulsionnel *Coherent Mira 900*, pompé par un laser Verdi. Le laser Verdi continu (d'une puissance de 12 W) pompe, à une longueur d'onde de 532 nm, un cristal de Titane-Saphir couplé à une cavité, dont on peut synchroniser les modes afin de produire une impulsion laser toutes les $T_L = 13, 15$ ns (76 MHz), d'une longueur d'onde ajustable (entre 730 et 980 nm). Cette accordabilité est un avantage majeur de ce laser, qui nous permet de le régler à la résonance des systèmes étudiés.

La figure 2.1 présente un schéma simplifié des trajets optiques du laser dans le dispositif expérimental. Immédiatement à la sortie de la cavité laser, le faisceau est filtré spatialement, grâce à un dispositif spécifique (DF) : une première lentille de focale 20 mm, focalise le faisceau sur un *sténopé* de 50 μm de diamètre ; le faisceau est ensuite recollimaté par une lentille de focale 40 mm. Ce dispositif nous permet de corriger la forte divergence du laser (2 mrad), et de la rendre quasiment nulle. Il en résulte que le diamètre du faisceau est quasi constant tout le long du trajet optique. Ce filtrage s'est avéré indispensable, étant données les fortes variations de chemin optique ($\sim 2\text{m}$) introduites entre les faisceaux. Directement après le filtrage du faisceau, une lame sé-

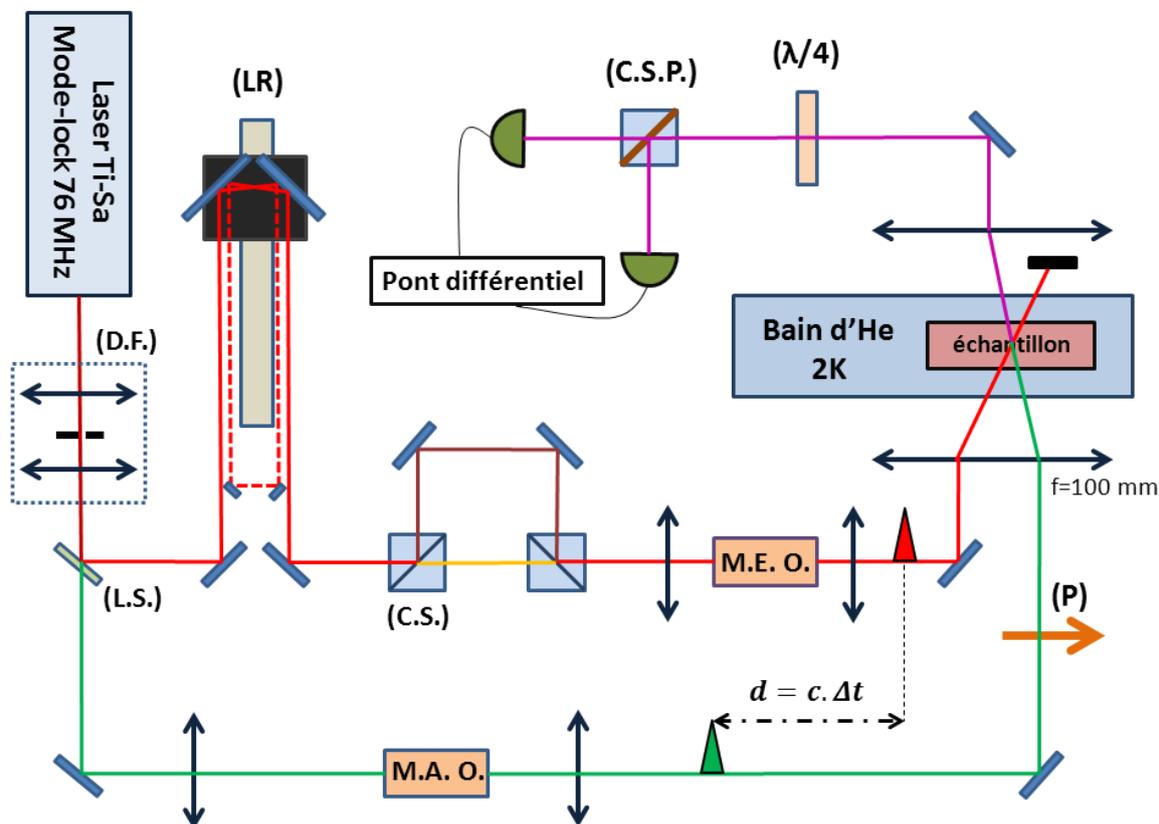


FIGURE 2.1 – Schéma simplifié du dispositif expérimental. Le faisceau sortant du laser Ti :Sa, passe à travers un dispositif de filtrage (D.F.). Il est ensuite divisé en un faisceau pompe (en rouge) et un faisceau sonde (en vert). Le faisceau pompe fait deux allers-retours à travers la ligne à retard (LR), puis passe à travers deux cubes séparateurs (C.S.), non polarisants, qui permettent de diviser son impulsion en deux, et d'introduire un décalage temporel entre elles. Le faisceau pompe passe ensuite à travers le modulateur électro-optique (M.E.O.), sur lequel il est focalisé grâce à une lentille. L'impulsion pompe est enfin envoyée sur l'échantillon situé dans le cryostat, grâce à une lentille de focale 100 mm. Le faisceau sonde est lui focalisé sur un modulateur acousto-optique (M.A.O.), puis polarisé linéairement par le polariseur (P), avant d'arriver sur l'échantillon, avec un retard $\Delta t = \frac{d}{c}$ par rapport à la pompe. De l'autre côté de l'échantillon, on vient collecter le faisceau sonde transmis, et celui-ci traverse une lame quart d'onde ($\frac{\lambda}{4}$), avant d'arriver sur un cube séparateur de polarisation (C.S.P.). Celui-ci permet d'en séparer les composantes σ_+ et σ_- , qui sont collectées et envoyées par des fibres sur un pont de diodes différentiel.

paratrice (L.S.) 70/30 divise le faisceau (et donc de chaque impulsion) en deux : un faisceau pompe et un faisceau sonde.

Le faisceau pompe est ensuite envoyé dans un coin de cube disposé sur une ligne à retard (LR), parallèlement à l'axe de déplacement de celle-ci. Quelle que soit la position du coin de cube le long de la ligne à retard, le faisceau réfléchi est parallèle au faisceau incident. On renvoie ensuite ce faisceau, grâce à une paire de miroirs (dont le réglage est critique), pour un deuxième passage à travers la ligne à retard. C'est le faisceau réfléchi après deux allers-retours dans le cube qu'on utilise par la suite. Étant donné que la lumière met 3,33 ps pour parcourir 1 mm, on comprend qu'un déplacement de 1 mm du coin de cube rallonge de 6,66 ps le temps de parcours d'une impulsion dans le cas d'un aller-retour simple, et de 13,33 ps dans le cas d'un double aller-retour. Notre ligne à retard a une extension de 590 mm, ce qui permet d'avoir une plage temporelle de 7,86 ns.

Le faisceau réfléchi est ensuite envoyé sur un ensemble de deux cubes séparateurs non polarisants (CS) et de deux miroirs, qui permettent de diviser l'impulsion pompe en deux et d'introduire un retard fixe entre ces deux impulsions de $T_D \simeq \frac{T_L}{9}$, tout en conservant l'alignement des deux faisceaux l'un par rapport à l'autre. Les deux faisceaux sont ensuite envoyés à travers un modulateur électro-optique (EO, dont le fonctionnement est détaillé plus bas), avant d'être focalisés sur l'échantillon à travers les fenêtres du cryostat grâce à une lentille de focale $f = 100$ mm. En estimant le diamètre D du faisceau à l'entrée de la lentille, et grâce à la relation $w_0 = \frac{2\lambda f}{\pi D}$, on estime le *waist* de notre faisceau laser, $w_0 = 30 \mu\text{m}$.

Le faisceau sonde est quant à lui envoyé à travers un modulateur acousto-optique (MAO). Il est ensuite polarisé linéairement, grâce à un polariseur (P) dont l'axe principal fait un angle de 45° avec le plan de la table optique, avant d'être focalisé sur l'échantillon grâce à la même lentille que celle utilisée pour le faisceau pompe. Il est important que le faisceau sonde entre dans cette lentille parallèlement au faisceau pompe, et proche de l'axe optique, afin que leurs points de focalisation respectifs dans le plan focal image de la lentille soient superposés. De plus, on fait en sorte que son diamètre d'entrée dans la lentille soit sensiblement plus grand que celui de la pompe, afin que son *waist* soit plus faible que celui de la pompe, et ainsi que le signal mesuré soit peu sensible au profil de puissance de la pompe ($w_0^{\text{sonde}} \simeq \frac{w_0^{\text{pompe}}}{2} = 15 \mu\text{m}$, et on sonde les BQ sous la tache laser de diamètre $30 \mu\text{m}$).

Le faisceau sonde transmis à travers l'échantillon est recollimaté grâce à une lentille de focale 100 mm. On bloque la pompe pour ne récupérer que la sonde transmise. Celle-ci passe à travers un cube séparateur de polarisation (CSP) Glan Laser, qui transmet la composante du faisceau sonde polarisée perpendiculairement par rapport à la table, et réfléchit la composante polarisée parallèlement. Ces deux composantes sont

ensuite recueillies par deux collimateurs qui les transmettent via des fibres optiques, sur un *pont de photodiodes*. Ce pont de photodiodes délivre une tension électrique proportionnelle à leur différence d'intensité : $V_{diode} \propto [I(H) - I(V)]$. On peut alors insérer une lame $\frac{\lambda}{4}$ avant le cube séparateur, dont les axes sont à 45° des axes du cube. Il en résulte la conversion de la polarisation σ_+ en H , et σ_- en V , si bien que : $V_{diode} \propto [I(\sigma_+) - I(\sigma_-)]$. Le traitement de ce signal de *dichroïsme circulaire photoinduit* est détaillé dans la section 2.2.

Il convient d'apporter quelques précisions sur certains équipements utilisés dans cette expérience. Les modulateurs utilisés dans cette expérience sont de deux types : acousto-optique et électro-optique. Il est important de préciser que lors de la mise en place de ces modulateurs, nous focalisons le faisceau sur leur milieu actif grâce à des lentilles de longues focales ($f = 300$ mm ou 500 mm), afin d'avoir une zone de Rayleigh longue, et située au niveau du milieu actif.

Modulateur acousto-optique

Le principe du modulateur acousto-optique (MAO) est bien connu : un cristal piézo-électrique génère une onde ultra-sonore, ici de fréquence 110 MHz, dans un milieu solide. Cette onde de pression crée une onde d'indice optique dans ce milieu, sur laquelle le faisceau optique incident est diffracté. En sortie du modulateur, on récupère le faisceau transmis direct, ainsi que le faisceau diffracté d'ordre 1. En modulant à une fréquence basse (1 Hz - 5 MHz) la génération de l'onde ultra-sonore, on peut moduler (*en intensité*) la présence ou l'absence du faisceau d'ordre 1 (ici le faisceau sonde), à une fréquence contrôlée. Il est important de noter que l'onde ultra-sonore n'est pas stationnaire mais progressive, et produit donc un effet Doppler sur le faisceau réfléchi d'ordre 1 (nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 5).

Modulateur électro-optique

Le fonction du modulateur électro-optique (MEO) repose sur l'effet Pockels. Le faisceau passe à travers un polariseur linéaire, qui le polarise à 45° des axes principaux d'un cristal biréfringent, d'indices optiques n_x , et n_y . Ces indices optiques sont sensibles à l'application d'un champ électrique E_M , tel que : $n_i = n_{i,0} - K_i E_M$. Alors la différence de phase entre les composantes E_x et E_y du faisceau incident s'écrit [15] :

$$\Delta\phi = [n_x(E_s) - n_y(E_s)]k_0e = \Delta\phi_0 - k_0e(K_x - K_y)E_M \quad (2.1)$$

où e est l'épaisseur de la *cellule de Pockels* traversée, et $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$. On peut ici remarquer que malgré les fortes tensions appliquées (typiquement 100 V sur 1 cm soit $E_s \approx 10^4$ V/m), les variations d'indice restent très faibles ($\delta n \approx 10^{-6}$). Cependant, la grande épaisseur du milieu actif, $e \approx 13$ cm $\gg \lambda_0$, permet de créer des déphasages non négligeables. On peut ainsi contrôler la polarisation de notre faisceau avec une tension externe. En pratique, une tension de $U = 110$ V permet de tourner la polarisation du

faisceau d'entrée de 90° , et donc une tension de ± 55 V permet de produire un faisceau σ_\pm . Un amplificateur adapté permet d'amplifier une tension de commande, afin de réaliser une modulation de la tension, à des fréquences comprises entre le Hz et 5 MHz. On peut ainsi moduler à une fréquence contrôlée la polarisation du laser, entre σ_+ et σ_- . Le dispositif a aussi l'avantage de permettre de réaliser des modulations de rapports cycliques différents de 0,5 (ce qui sera utilisé dans le chapitre 4). On peut également se servir de cette modulation de phase pour moduler l'intensité du faisceau pompe, en plaçant à la sortie de la cellule un polariseur croisé avec celui de l'entrée et en modulant $\Delta\phi$ entre 0 et 90° . Suivi d'une lame quart d'onde, ce dispositif permet de réaliser une modulation $\sigma_\pm/0$, avec la fréquence de notre choix. On voit donc que ce MEO permet une grande flexibilité sur la modulation de l'intensité ou de la polarisation du faisceau pompe.

Pont de photodiodes

L'impulsion sonde vient traverser l'échantillon à un délai Δt après le passage de l'impulsion pompe. Afin d'obtenir le signal de dichroïsme circulaire, on analyse en polarisation le faisceau transmis, constitué du champ sonde transmis ainsi que du champ stimulé des BQ¹ (dont la description est faite dans la suite de ce chapitre). L'enveloppe du champ sonde transmis peut s'écrire : $\vec{E}_s(t) = \sqrt{2}E_1(t)\vec{e}_x + c.c.$. Le champ émis par l'ensemble des BQ se décompose en deux composantes σ^\pm , et on peut écrire leurs enveloppes : $E_{BQ}(t) = E_{BQ}^+\vec{e}_+ + E_{BQ}^-\vec{e}_- + c.c.$, où $\vec{e}_\pm = \vec{e}_x \pm i\vec{e}_y$.

On analyse la polarisation transmise grâce à un cube séparateur de polarisation associé à une lame quart d'onde ($\lambda/4$) et à un pont de photo-diodes rapides. Le cube séparateur de polarisation transmet la composante polarisée verticalement, et réfléchit celle polarisée horizontalement. Si la $\lambda/4$ est correctement orientée, elle change la polarisation \vec{e}_+ en polarisation verticale, et \vec{e}_- en horizontale. Des fibres optiques collectent les composantes réfléchi et transmise par le cube, et les envoient sur un pont de photodiodes, qui fait la différence de leurs intensités. Le signal enregistré par le pont peut alors s'écrire :

$$S \propto |E_V(t)|^2 - |E_H(t)|^2 = |E_+(t)|^2 - |E_-(t)|^2 = 2\Re [E_1^*(E_{BQ}^+ - E_{BQ}^-)] \quad (2.2)$$

où l'on néglige les termes du second ordre en E_{BQ}^\pm .

On voit donc que notre signal est sensible à la différence d'intensité entre les composantes polarisées σ^+ et σ^- de la lumière qui traverse l'échantillon, d'où son nom de dichroïsme circulaire photo-induit (*PCD*). On remarque aussi que le signal est amplifié lorsqu'on augmente la puissance sonde (et donc $E_1(t)$). Cependant, dans la partie suivante (traitant du champ émis par les BQ en cohérence avec la sonde), nous verrons qu'il est critique de garder une puissance sonde suffisamment faible, afin de ne

1. Un diaphragme permet de couper le faisceau pompe transmis.

pas perturber la matrice densité du système mesuré. Cette condition nous impose une majoration de la puissance sonde utilisable ($P_{sonde} \ll P_{pompe}(\theta = \pi/2)$), typiquement $P_{sonde} \sim P_{pompe}/100$).

L'expression du signal donnée en (2.2) est valide lorsque le pont de photodiodes est parfaitement équilibré (i.e. l'intensité du faisceau sonde est parfaitement répartie entre les deux détecteurs). La configuration en pont différentiel permet alors de réduire drastiquement le bruit de détection provenant des fluctuations de puissance du laser. Malheureusement le pont n'est jamais parfaitement équilibré, et une partie des fluctuations du laser se répercutent sur la tension délivrée, à laquelle il faut ajouter un bruit électronique important (de provenance thermique). Le signal $S(t)$ reste donc faible devant le bruit total, et afin de détecter ce signal on a recours à l'analyse par une détection synchrone.

Détection synchrone

La tension $V(t)$ délivrée par le pont de photodiodes contient le signal $S(t)$ qui nous intéresse, mais aussi un bruit aléatoire $B(t)$, et un signal $D_p(t)$ provenant de la diffusion de la pompe sur les détecteurs. Afin d'isoler le signal de PCD et de l'amplifier, on utilise une double modulation, du faisceau pompe d'une part et du faisceau sonde d'autre part. On analyse ensuite la tension $V(t)$ grâce à une détection synchrone à deux étages. La modulation du faisceau sonde (en intensité) est réalisée par le MAO (dont le fonctionnement a été détaillé précédemment) à une fréquence $f_I \sim 100$ kHz. La modulation du faisceau pompe (en intensité ou en polarisation) est réalisée par l'EOM (dont le fonctionnement est détaillé précédemment) à une fréquence $f_{II} \sim 1$ kHz. La démodulation est faite grâce à une détection synchrone *Zurich Instrument (HF2LI)*. Nous expliquons ici de façon simplifiée le fonctionnement d'un étage de démodulation, et le principe permettant la réjection du bruit.

La tension délivrée par le pont de photodiodes contient un bruit important, qui a des sources multiples (bruit électronique, thermique, lumière parasite, ...) qui s'additionnent pour donner un caractère aléatoire à la fonction $B(t)$. De plus, même si le faisceau pompe est bloqué par un diaphragme, une partie du faisceau est diffusée par l'échantillon dans la direction du faisceau sonde, et atteint le pont de diodes; cette contribution est modulée à la fréquence f_{II} . Enfin, le signal $S(t)$ dépend de l'excitation produite par la pompe, et est induit par la sonde. Il est donc modulé par les deux fréquences f_I et f_{II} , et le détecteur voit le signal à ces deux fréquences :

$S \cos(2\pi f_I t) \cos(2\pi f_{II} t)^2$. La tension délivrée par le pont de diodes s'écrit alors :

$$V(t) = S \cos(2\pi f_I t) \cos(2\pi f_{II} t) + D_p \cos(2\pi f_{II} t) + B(t) \quad (2.3)$$

Le premier étage de la détection synchrone multiplie cette tension par un signal référence $\cos(2\pi f_I t)$ donné par l'appareil de modulation. La tension multipliée est alors :

$$\begin{aligned} V(t) \cos(2\pi f_I t) = S \left(\frac{1 + \cos(4\pi f_I t)}{2} \right) \cos(2\pi f_{II} t) &+ D_p \cos(2\pi f_{II} t) \cos(2\pi f_I t) \\ &+ B(t) \cos(2\pi f_I t) \end{aligned} \quad (2.4)$$

Grâce à un circuit *RC*, ce signal est intégré pendant une durée τ_I . Or : $\frac{1}{\tau_I} \int_0^{\tau_I} \cos(\alpha t) dt = \frac{\sin(\alpha \tau_I)}{\alpha \tau_I}$, et donc le signal intégré pendant un temps τ_I très court par rapport à $1/f_{II}$ devient :

$$S I_I(t) = S \left[\frac{1}{2} + \frac{\sin(4\pi f_I \tau_I)}{4\pi f_I \tau_I} \right] \cos(2\pi f_{II} t) + D_p \cos(2\pi f_{II} t) \frac{\sin(2\pi f_I \tau_I)}{2\pi f_I \tau_I} + B(t) \frac{\sin(2\pi f_I \tau_I)}{2\pi f_I \tau_I}$$

Lorsque $\tau_I f_I \gg 1$ (i.e. lorsqu'on intègre sur plusieurs périodes $1/f_I$), tout les termes de cette équation vont tendre vers 0, sauf le terme constant $(S(t)/2) \cos(2\pi f_{II} t)$. On va amplifier ce terme (par un facteur $10 - 10^4$), avant de le renvoyer au second étage de la détection synchrone, qui va récupérer sa composante à la fréquence f_{II} (et se débarrasser d'autres sources de bruit éventuelles).

Cette description succincte du fonctionnement de la détection synchrone permet de mettre en avant trois caractéristiques importantes :

- L'importance du choix des fréquences f_j et des temps d'intégration τ_j . Le temps τ_I doit être court par rapport à $1/f_{II}$ (pour ne pas filtrer le signal modulé à la fréquence f_{II}), mais long par rapport à $1/f_I$ (pour obtenir une bonne réjection du bruit). Les fréquences doivent donc être suffisamment écartées pour qu'on puisse satisfaire la condition : $\frac{1}{f_I} \ll \tau_I \ll \frac{1}{f_{II}} \ll \tau_{II}$. Où le temps d'acquisition $\sim 3\tau_{II}$ (pour éviter les effets capacitifs) est limité par la patience de l'expérimentateur (de l'ordre de la seconde).
- Les fréquences des modulateurs f_j doivent être bien distinctes des fréquences de fonctionnement des différentes sources de bruit (ex : plafonniers à 100 Hz, ...), sous peine d'amplifier celles-ci avec le signal.
- Enfin, la phase du signal peut être obtenue, grâce à la démodulation du signal multiplié par $\sin(2\pi f_j t)$, en quadrature avec la composante en cosinus. Si le signal garde une phase constante par rapport à la fréquence référence f_j , alors on peut suivre indépendamment le signal en phase (X) et en quadrature (Y) avec la référence ; on pourra ainsi suivre l'évolution du signe du signal.

2. Généralement les modulations utilisées ont des traces temporelles de créneaux. La modulation résultante pour le faisceau (et donc pour le signal), est alors une série de Fourier de fréquence fondamentale f_I qui s'écrit : $\sum_i (a_i \cos(2\pi i f_I t) + b_i \sin(2\pi i f_I t))$, dont les coefficients a_i et b_i dépendent de la forme temporelle de la modulation, de son rapport cyclique, et de la réponse électronique des instruments. Afin de simplifier le traitement fait ici, on ne considère que la première harmonique (fondamentale) de cette série, qui est la plus forte, et généralement celle analysée par la détection synchrone.

Dans cette section, nous avons vu comment notre expérience permet de diviser l'impulsion sortant du laser en deux impulsions, d'introduire un délai temporel entre ces deux impulsions, de contrôler indépendamment leurs polarisations, de les faire coïncider spatialement sur l'échantillon, et enfin d'analyser la polarisation de la sonde transmise.

Il est important de noter que dans cette description de l'expérience, on a omis par souci de clarté un certain nombre de miroirs, de diaphragmes, et d'éléments de polarisation (permettant de contrôler la puissance de chaque faisceau).

Enfin, si une version de l'expérience était déjà fonctionnelle lors du début de cette thèse [47, 7], on notera que le montage expérimental a été repris afin d'y apporter les améliorations suivantes : le filtrage du faisceau, le double passage à travers la ligne à retard, et l'utilisation du modulateur électro-optique.

2.1.3 Conditions expérimentales et échantillons

Les échantillons étudiés grâce à cette expérience sont des échantillons denses (10^{10}cm^{-2}), contenant trente plans de BQ d'InAs/GaAs, sans cavité. La tache du laser sonde ayant un diamètre $\sim 30 \mu\text{m}$, on estime que $\sim 10^6$ BQ sont sous le spot laser, parmi lesquelles seules $\sim 10^4 - 10^5$ sont résonantes avec le laser, et sont donc sondées par l'expérience.

Les BQ sont δ -dopées p grâce à l'insertion d'un plan d'impuretés de carbone (de densité $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$) à 2 nm de chaque plan de BQ. On estime que chaque BQ contient en moyenne un trou³. Bien que les échantillons étudiés aient a priori des caractéristiques identiques, les différentes croissances (et les recuits réalisés post-croissance) leur confèrent des caractéristiques (et notamment des énergies) différentes. La majorité des résultats présentés dans les chapitres 3 et 4 de ce manuscrit ont été obtenus par l'étude de l'échantillon 74K31. La photoluminescence de cet échantillon (associée essentiellement à sa transition fondamentale) est large, centrée en 1,352 eV (917 nm), et d'une

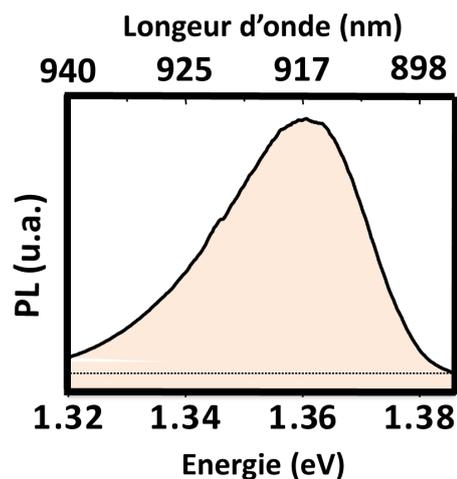


FIGURE 2.2 – Photoluminescence de l'échantillon 74K31 (excitée de façon non-résonante).

3. Sur ces échantillons, nous n'observons pas de signatures de la structure fine (cf 1.4.4) dans le signal de PCD, ce qui permet d'affirmer que peu de BQ restent non-dopées. Les BQ contenant deux trous ont leur niveau S_v plein, et ne sont pas résonantes avec le laser.

Échantillon	Dopage	Nombre de plans	Densité (μm^{-2})	Cavité
74K31	p	30	10^2	Non
93P134	p	30	10^2	Non

FIGURE 2.3 – Échantillon de BQ étudiés avec ce dispositif expérimental, dont la croissance a été réalisée par Aristide Lemaître au Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN). Bien que ces échantillons aient des caractéristiques identiques, leurs propriétés (dopage, énergie de la transition fondamentale, facteur de Landé, ...) varient.

largeur à mi-hauteur de 30 meV (c.f. figure 2.2).

Dans la configuration *Voigt*, les échantillons sont placés au centre d'une bobine double (*split coils*) de fils supraconducteurs, qui permet d'appliquer un champ B_x entre 0 et 1,3 T, de direction orthogonale à celle de l'axe optique. La bobine (et donc l'échantillon) située au bout d'une canne, est immergée dans un cryostat à bain d'hélium liquide, pompé à une pression ~ 5 mbar. L'hélium thermalisant l'échantillon est alors superfluide. Il ne présente pas de bulles dues à l'évaporation, et garantit une température $\sim 2,5K$.

2.2 Interaction de la sonde avec l'échantillon, et démodulation du signal

Dans cette partie, nous allons faire une description formelle du signal de dichroïsme circulaire photo-induit (PCD⁴), obtenu grâce à l'interaction du faisceau sonde et d'un ensemble de BQ dopées p . Ce type de signal sera très utilisé au cours des deux prochains chapitres de ce manuscrit.

Une première description *macroscopique* du PCD, peut se comprendre intuitivement. Dans les BQ dopées, les règles de sélection optique (définies précédemment) lient directement les états de spin d'une BQ à l'hélicité de la lumière qu'elle peut absorber (à l'énergie de la transition fondamentale). Une différence de population des états de spin de la BQ (induite par l'excitation pompe), provoque une différence d'absorption des composantes σ_+ et σ_- du faisceau sonde polarisé linéairement. La détection de l'ellipticisation résultante de la sonde transmise à l'aide du pont de photodiodes, donne ainsi

4. Les initiales *PCD* viennent de la dénomination anglaise, et seront utilisées dans le reste de cette thèse par habitude.

une information sur les occupations des différents états de spin de la BQ. Dans cette description simple, on peut ainsi écrire : $PCD \propto I_{\sigma_+} - I_{\sigma_-} \propto (\rho_{T\downarrow} - \rho_{T\uparrow}) - (\rho_{h\downarrow} - \rho_{h\uparrow})$. Cette description, qui s'avère exacte, ne rend cependant pas bien compte de l'état quantique mesuré, ni de la perturbation que la sonde pourrait causer. Nous allons la vérifier à l'aide d'une description formelle du signal, en prenant en compte (dans un formalisme semi-classique) l'interaction du laser sonde avec l'échantillon, et le champ stimulé par celui-ci dans les BQ.

Tout d'abord le champ du laser sonde, au niveau d'une BQ ($\vec{r} = \vec{0}$ ⁵), peut s'écrire :

$$\vec{E}_s(t) = \sqrt{2}E_0p(t)e^{-i\omega t}\vec{e}_x + c.c. = (E_0e_+^{\vec{r}} + E_0e_-^{\vec{r}})p(t)e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.5)$$

où $e_{\pm}^{\vec{r}} = \vec{e}_x \pm ie_y$, et $p(t)$ est l'enveloppe temporelle de l'impulsion centrée en $t = 0$ et de durée caractéristique τ ⁶. E_0 est l'amplitude du champ sonde, et ω sa pulsation.

Ce champ interagit avec la BQ, décrite de façon exhaustive par la matrice densité ρ , qu'on écrit dans la base des états propres $\{|T \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle, |h \uparrow\rangle, |h \downarrow\rangle\}$. Les états $|h \uparrow(\downarrow)\rangle$ sont les états fondamentaux de la BQ contenant un trou résidant, et dont l'énergie est définie nulle. Les états contenant un trion positif $|T \uparrow(\downarrow)\rangle$, sont dégénérés à l'énergie $\hbar\omega_0$ ⁷. Par souci de clarté, on appelle ρ la matrice densité à $t = 0^-$ juste avant l'arrivée de l'impulsion (qu'on cherche à connaître), et σ la matrice densité affectée par le passage de l'impulsion sonde. Le Hamiltonien d'interaction du laser sonde et de la BQ s'écrit :

$$H_I = -E_0\hat{d}_+ - E_0\hat{d}_- + H.c. \quad (2.6)$$

où \hat{d}_{\pm} sont les opérateurs dipolaires qui suivent les règles de sélection optique : $\hat{d}_- = d|T \uparrow\rangle\langle h \uparrow|$ et $\hat{d}_+ = d|T \downarrow\rangle\langle h \downarrow|$, et qui possèdent une force égale : d . L'interaction peut alors s'écrire :

$$H_I = -\hbar\Omega_s p(t)e^{-i\omega t}|T \uparrow\rangle\langle h \uparrow| - \hbar\Omega_s p(t)e^{-i\omega t}|T \downarrow\rangle\langle h \downarrow| + H.c. \quad (2.7)$$

où l'on introduit la pulsation de Rabi de l'impulsion sonde $\Omega_s = \frac{dE_0}{\hbar}$, qui est considérée faible (i.e. $|\Omega_s\tau| \ll 1$). L'évolution de la matrice densité pendant le passage de la sonde est donnée par l'équation de Liouville : $i\hbar\dot{\sigma}(t) = [H_0 + H_I, \sigma(t)]$. Tout amortissement ou perte de cohérence est négligé pendant les ~ 2 ps de passage de l'impulsion. L'évolution du terme de population $\sigma_{T\uparrow} = \langle T \uparrow | \sigma | T \uparrow \rangle$ suit alors :

5. Les dimensions d'une BQ étant faibles par rapport à la longueur d'onde ($10 \text{ nm} \ll \lambda_{GaAs} \sim 300 \text{ nm}$), on peut considérer que le champ vu par la BQ est homogène dans l'espace de celle-ci.

6. Dans notre traitement, on ne prend pas en compte les coefficients de transmission $air \rightarrow GaAs$ et $GaAs \rightarrow air$, car on ne s'intéresse pas directement à l'amplitude du champ électrique. De même le facteur de phase dû à la transmission à travers le GaAs n'intervient pas dans le signal.

7. Afin de simplifier le traitement qui suit, on ne prendra pas en compte les différences d'énergie des BQ adressées par le laser. L'ensemble peut alors être assimilé à une seule BQ, d'énergie $\hbar\omega_0$.

$$\dot{\sigma}_{T\uparrow} = \langle T\uparrow | H_I \sigma(t) - \sigma(t) H_I | T\uparrow \rangle \quad (2.8)$$

$$= i\Omega_s p(t) e^{-i\omega t} \sigma_{h\uparrow T\uparrow} - i\Omega_s p(t) e^{+i\omega t} \sigma_{T\uparrow h\uparrow} \quad (2.9)$$

En intégrant cette équation au premier ordre en champ sonde on obtient :

$$\sigma_{T\uparrow}(t) \simeq \rho_{T\uparrow}(0^-) + \left(i\Omega_s \rho_{h\uparrow T\uparrow} e^{-i\omega t} \int_{-\infty}^t p(t') dt' + c.c. \right) \quad (2.10)$$

Cette expression est valable pendant le passage de la sonde, sous l'hypothèse de résonance du laser avec la transition de la BQ, qu'on peut écrire $|\omega - \omega_0| \tau \ll 1$ ⁸. Le deuxième terme est la modification de la matrice densité originale dû au passage de la sonde. Cette modification, proportionnelle à Ω_s et au terme de cohérence inter-bande $\rho_{h\uparrow T\uparrow}(0^-)$ ⁹, est négligeable. On obtient le même type de dépendance temporelle pour les autres termes diagonaux de la matrice densité, ce qui permet de confirmer que la modification des populations des états quantiques de la BQ lors du passage de la sonde est faible.

On s'intéresse maintenant à l'évolution des termes inter-bande de la matrice densité, termes appelés *cohérences*, qui vont être responsables de l'émission d'un champ électro-magnétique par les BQ. On obtient :

$$(i\hbar)\dot{\sigma}_{T\uparrow h\uparrow}(t) = \hbar\omega_0 \sigma_{T\uparrow h\uparrow}(t) - \hbar\Omega_s p(t) e^{-i\omega t} \sigma_{h\uparrow} + \hbar\Omega_s p(t) e^{-i\omega t} \sigma_{T\uparrow} \quad (2.11)$$

L'intégration de cette équation (encore une fois au premier ordre en Ω_s) donne :

$$\sigma_{T\uparrow h\uparrow} \simeq \rho_{T\uparrow h\uparrow}(0^-) e^{-i\omega t} + i\Omega_s [\rho_{h\uparrow}(0^-) - \rho_{T\uparrow}(0^-)] e^{-i\omega t} \int_{-\infty}^t p(t') dt' \quad (2.12)$$

Suivant la même démarche, le terme associé à l'autre transition circulaire s'écrit :

$$\sigma_{T\downarrow h\downarrow} \simeq \rho_{T\downarrow h\downarrow}(0^-) e^{-i\omega t} + i\Omega_s [\rho_{h\downarrow}(0^-) - \rho_{T\downarrow}(0^-)] e^{-i\omega t} \int_{-\infty}^t p(t') dt' \quad (2.13)$$

Le premier terme de ces équations est négligeable (à cause de son déphasage rapide pour un ensemble), et n'intervient pas dans le signal car il n'est pas induit par le passage de la sonde (et donc pas modulé à la fréquence de modulation de celle-ci). Le deuxième terme va lui être responsable de l'émission de la BQ stimulée par le passage de la sonde. En effet, la valeur moyenne du dipôle de la BQ est :

$$\langle \hat{d}_+(t) \rangle = Tr[\sigma(t) \hat{d}_+] = d[\sigma_{T\downarrow h\downarrow} + \sigma_{h\downarrow T\downarrow}] \quad (2.14)$$

8. Cette condition, signifiant que le déphasage dû à l'écart d'énergie est négligeable durant la durée de l'impulsion, est équivalente à écrire que la largeur spectrale de l'impulsion ΔE est bien plus grande que la différence entre son énergie centrale et l'énergie de la BQ : $\frac{\hbar|\omega - \omega_0|}{\Delta E} \ll 1$.

9. Les termes de cohérence inter-bande de la matrice densité provenant des différentes BQ vont rapidement se déphaser (du fait de la dispersion de leur énergie $\hbar\omega_0$), et ainsi ce terme va rapidement s'annuler après le passage de la pompe.

pour sa composante suivant e_+^z . Alors le champ stimulé E_{BQ}^+ émis par l'ensemble de BQ peut s'écrire (en utilisant la dépendance 2.13) :

$$E_{BQ}^+ = A[\rho_{h\downarrow}(0^-) - \rho_{T\downarrow}(0^-)] + c.c. \quad (2.15)$$

où A est un coefficient de proportionnalité. Si on réinjecte cette expression dans celle du signal délivré par le pont de photo-diodes (2.2), on obtient :

$$S(t) = 2\Re [AE_0 ([\rho_{h\downarrow}(0^-) - \rho_{T\downarrow}(0^-)] - [\rho_{h\uparrow}(0^-) - \rho_{T\uparrow}(0^-)]) + c.c.] \quad (2.16)$$

On peut donc réécrire l'expression du signal :

$$\begin{aligned} PCD(t) &\propto [\rho_{h\downarrow}(0^-) - \rho_{h\uparrow}(0^-)] - [\rho_{T\downarrow}(0^-) - \rho_{T\uparrow}(0^-)] \\ &\propto [\Delta\rho_h - \Delta\rho_T] \end{aligned} \quad (2.17)$$

où on l'on a défini : $\Delta\rho_T = \rho_{T\downarrow} - \rho_{T\uparrow}$ et $\Delta\rho_h = \rho_{h\downarrow} - \rho_{h\uparrow}$. Le signal délivré par le pont de photodiodes est donc, conformément à notre première intuition, proportionnel aux différences de populations des états de spin du trou et du trion. Il convient d'insister sur trois caractéristiques du signal de PCD :

- Le signal est sensible aux projections \hat{S}_z de spin du trou et du trion, car : $\langle \hat{S}_z^h \rangle = \frac{\hbar}{2}(\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow})$. Ainsi, $PCD(\Delta t) \propto (\langle S_z^T(\Delta t) \rangle - \langle S_z^h(\Delta t) \rangle)$.
- Le signal de PCD est sensible à la fois au spin du trion et au spin du trou, lorsque ceux-ci coexistent dans notre ensemble de BQ.
- Les dépendances du PCD avec ces spins ont un signe opposé.

Afin d'illustrer l'intérêt de ce signal pour étudier la dynamique du spin, nous allons présenter dans la section qui suit le signal obtenu lors d'une expérience menée à champ nul sur un ensemble de BQ dopées p .

2.3 Signal de dichroïsme circulaire photo-induit typique d'un ensemble de BQ en l'absence de champ appliqué

Afin d'illustrer le type de signaux PCD obtenus sur un ensemble de BQ, nous présentons ici succinctement une expérience pompe-sonde faite sur un ensemble de BQ dopées p (échantillon 74K31), en l'absence de champ magnétique appliqué.

Une impulsion pompe polarisée σ^{+10} résonante avec la transition fondamentale de la BQ, arrive à un temps $t = 0$. Conformément aux règles de sélection optique (cf.

10. Ici nous décrivons la dynamique obtenue lors de l'arrivée d'une impulsion pompe pendant la demi-période σ^+ du MEO. Lors de la demi-période σ^- , un déséquilibre de population opposé est créé, et on obtient le signal opposé. Une modulation σ^+/σ^- à la fréquence de l'excitation permet donc, après démodulation, d'obtenir un signal double de celui qu'on aurait obtenu avec une modulation $\sigma^+/0$.

partie 1.3), cette impulsion est absorbée par les BQ contenant un trou $|h \downarrow\rangle$, et excite un trion $|T \downarrow\rangle$. Le déséquilibre de population ainsi créé (réduction de $\rho_{h\downarrow}$ et augmentation de $\rho_{T\downarrow}$) provoque, conformément à la formule (2.17), un pic du signal de PCD observé en $t = 0^+$ (visible sur la figure 2.4). Lorsqu'on déplace la ligne à retard, on change le délai Δt entre les impulsions pompe et sonde. La sonde interagit avec le système à $t = \Delta t$, et ainsi le signal obtenu est une image de $\rho(\Delta t)$.

Le trion se recombine en un temps caractéristique τ_{rad} , et provoque l'évolution inverse de ρ (augmentation de $\rho_{h\downarrow}$ et diminution de $\rho_{T\downarrow}$), et provoque donc une diminution de $PCD(\Delta t)$ en un temps caractéristique τ_{rad} . A cette décroissance, il faut ajouter celle due au déphasage du spin électronique du trion, provoquée par les fluctuations du champ nucléaire Δ_n au sein de l'ensemble de BQ (tel que décrit dans la partie 1.4). Le déphasage induit une décroissance de $\Delta\rho_T$ en un temps caractéristique $T_\Delta \sim 0,5$ ns [36]. Cependant cette dynamique est difficilement observable dans notre échantillon ¹¹, d'une part parce qu'elle est écrantée par le $\tau_{rad} = 700$ ps qui est plus court, et d'autre part à cause des nombreuses inhomogénéités de l'ensemble de BQ adressées (que nous verrons dans le chapitre suivant).

Lorsque $\Delta t \sim 3\tau_{rad}$, quasiment tous les trions sont recombinés, cependant le signal est non nul. Ce signal provient de la contribution du déséquilibre de population des trous $\Delta\rho_h$ (conformément à la formule (2.17)). En effet le pompage répété du système (typiquement par ~ 10000 impulsions dans une demi-période de modulation de la pompe) provoque une accumulation de population sur l'état $|h \uparrow\rangle$ qui n'est pas adressé par la pompe ¹². Cette différence de population $\Delta\rho_h$, assimilable au spin moyen $\langle \hat{S}_h \rangle$ de l'ensemble, relaxe à cause du mécanisme prédit par Merkulov [92]. Cependant, l'interaction hyperfine étant un ordre de grandeur plus faible pour le trou que pour l'électron, le temps de déphasage de l'ensemble de spins de trous vaut $T_{\Delta,h} \sim (10 \times T_{\Delta,e}) \sim 10$ ns. Cette dynamique longue est difficilement observable sur les délais courts suivant l'arrivée de l'impulsion pompe. Cependant il s'avère important, même pour les délais court, de prendre en compte sa présence dans le signal, en plus de la contribution venant du trion.

La dynamique de relaxation des spins des trous résidents continue jusqu'à l'arrivée de l'impulsion pompe suivante (pendant $\approx 13, 15$ ns). Comme le montre la figure 2.4, notre expérience donne accès aux délais précédant immédiatement l'arrivée de l'im-

11. Elle fera l'objet d'une étude plus détaillée dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

12. Ce mécanisme de pompage résonant (courant dans les systèmes à quatre niveaux) repose sur le déséquilibre des temps de relaxation du spin du niveau excité (~ 1 ns pour le trion) et du niveau fondamental (~ 10 ns pour le trou). Les études précédentes sur cet échantillon ont permis d'estimer que les populations (et donc le signal) atteignent leur niveau stationnaire en ~ 10 impulsions. Nous ne nous intéresserons pas à cette dynamique dans nos expériences (pour plus de détail voir la thèse de F. Fras [47]).

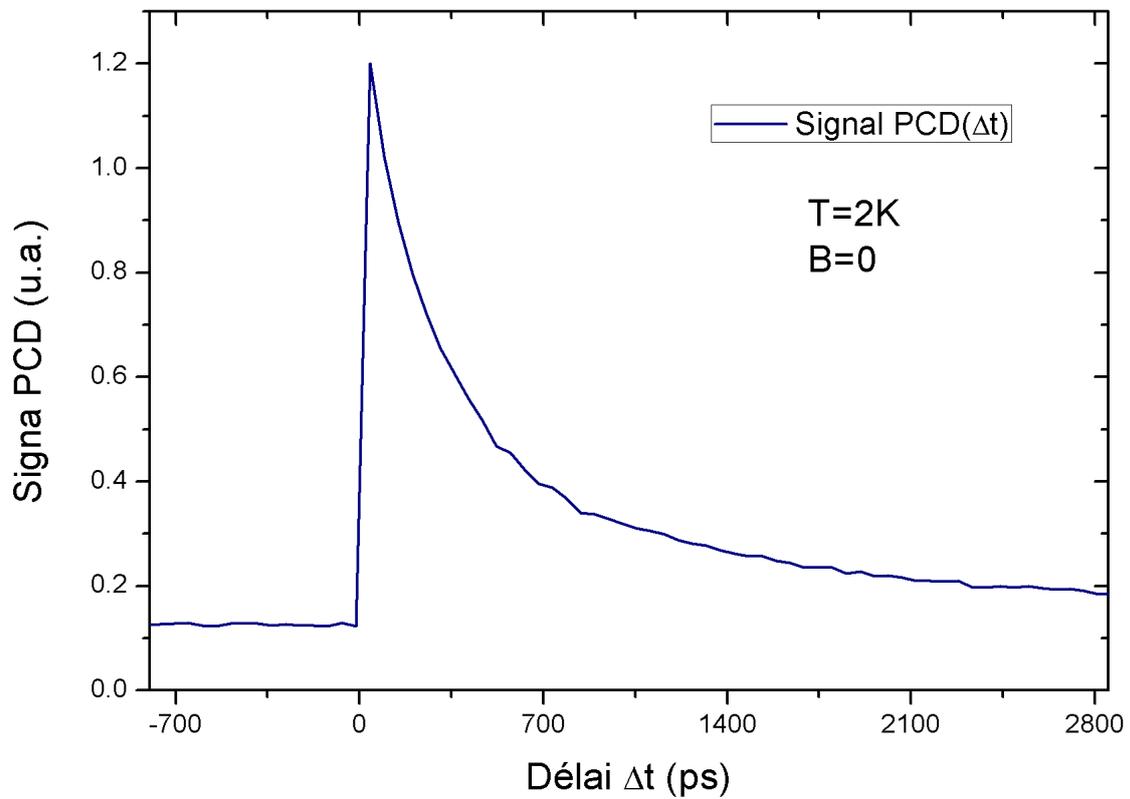


FIGURE 2.4 – Signal PCD typique d'une BQ dopée p en l'absence de champ. Après un régime transitoire pendant $\sim \tau_{\text{rad}}$ correspondant à l'excitation du trion, le signal qui subsiste est attribué uniquement au trou résident. Ce signal décroît, mais reste non nul juste avant l'arrivée de l'impulsion pompe suivante (délais négatifs).

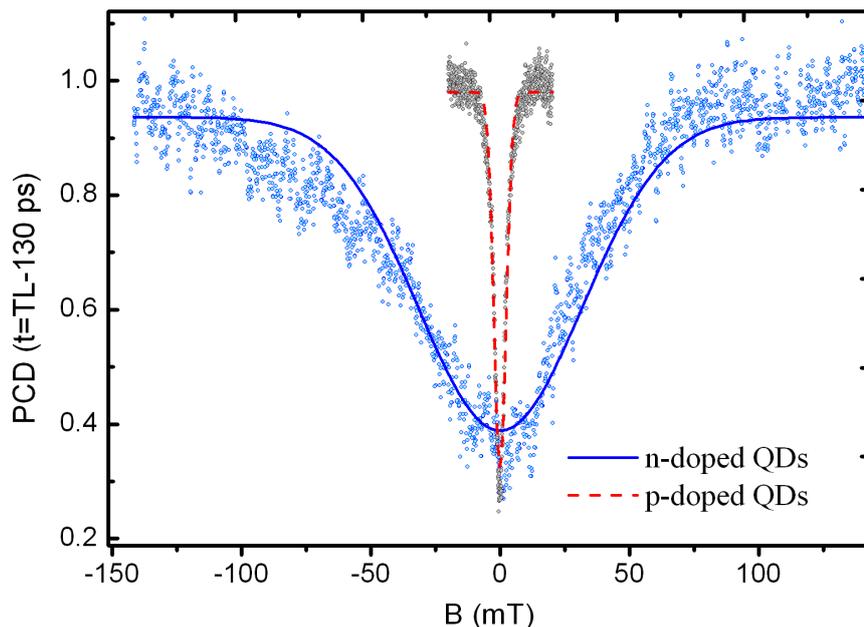


FIGURE 2.5 – . Signal PCD au délai $\Delta t \approx 13$ ns, en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué. Pour les BQ d'InAs/GaAs dopées p (courbe noire), un champ $\sim 2,5$ mT suffit à écranter les fluctuations du champ nucléaire. Pour les BQ dopées n (courbe bleue), il faut un champ 10 fois plus fort ~ 30 mT.

pulsion suivante. On peut redéfinir le délai Δt par rapport à cette impulsion, et ces délais seront alors négatifs. Le signal obtenu juste avant l'arrivée de l'impulsion pompe est donc à un délai accessible par l'expérience, et $PCD(t = 0^-) \equiv PCD(t = T_L = 13, 15 \text{ ns})$. C'est ce signal qui a été utilisé pour les études de $T_{\Delta, h}$ menées par notre équipe, qui ont permis de confirmer $T_{\Delta, h} \sim 10$ ns [36].

De façon analogue aux expériences menées sur l'électron, on peut écranter les fluctuations du champ nucléaire vu par le trou, en appliquant un champ magnétique longitudinal B_Z . Ce champ est, à l'image de l'interaction hyperfine (et comme prévu par la définition donnée en 1.4.2), dix fois plus faible dans le cas du trou (comme on peut le voir sur la figure 2.5). Il a été estimé à $\Delta_{B, h} \sim 2,5$ mT.

Dans ce chapitre, nous avons vu que notre dispositif expérimental était adapté à l'observation du spin moyen du trou et du trion, dans un ensemble de BQ dopées p ; et à l'étude de leur dynamique sur une plage temporelle ~ 10 ns. De plus, les expériences menées ont permis de confirmer la faiblesse relative de l'interaction hyperfine dans le cas du spin du trou, ce qui renforce notre intérêt pour l'étude de son temps de cohérence, qui sera menée dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Précession de spins en champ transverse et blocage de phase

Ce chapitre est consacré à la mesure du temps de cohérence T_2 d'une superposition d'états de spin de trous confinés dans des BQ d'InAs/GaAs. Nous y verrons d'abord comment le régime pulsé de l'excitation laser induit un blocage de phase (*Mode Locking*) de la précession de spins, et comment celui-ci permet de circonvenir au problème du déphasage inhomogène, afin de mesurer un T_2 quasi homogène, même sur un échantillon où celui-ci est important. Nous étudierons ensuite des premières observations du signal de Mode Locking, et nous verrons comment celles-ci permettent d'estimer les inhomogénéités des BQ de notre échantillon. De façon plus approfondie, nous verrons comment l'initialisation des états excités, les états trions chargés positivement (T), permet de créer une superposition d'états (et donc de la cohérence) sur les états fondamentaux du trou (h). Enfin, nous confronterons, à l'aide de simulations, le signal observé et sa modélisation, afin d'estimer le T_2 associé au spin du trou dans nos échantillons.

3.1 Introduction et contexte

Il a déjà été mentionné que, le spin d'un porteur de charge confiné dans une BQ est un bon candidat pour la réalisation d'un qubit (voir section 1.5). La réalisation d'un qubit nécessite qu'on puisse initialiser, puis adresser notre système, dans une superposition d'états quantiques. Cependant, toute superposition d'états est limitée par son temps de cohérence T_2 , qui caractérise le temps de déclin des termes de cohérence de la matrice densité du système [25]. La mesure du T_2 est donc fondamentale pour la réalisation d'un qubit.

Dans le cas d'un système de spins dans un semi-conducteur, la réalisation d'une superposition d'états se fait simplement par l'application d'un champ transverse à l'axe optique (comme détaillé dans la section 3.3). Pour la mesure du T_2 de spin dans la

matière condensée, et plus particulièrement dans les BQs, plusieurs méthodes optiques ont déjà été mises en œuvre, et nous en présentons ici un bref historique.

3.1.1 Mesure du T_2 par effet Hanle

Une des premières méthodes optiques permettant de mesurer le T_2 d'un spin utilise l'effet Hanle (EH). Celui-ci repose sur l'excitation optique d'un porteur de spin (électron ou trou), soumis à un champ transverse. Ce champ induit la rotation du spin du porteur photo-excité, qui provoque une chute de la polarisation circulaire de la photoluminescence, mesurée le long de l'axe optique. Cette rotation s'effectue à une pulsation ω_{Larmor} , pendant un temps composite du temps de recombinaison T_{rad} et du temps de cohérence T_2 . Le taux de polarisation circulaire (TPC) en fonction du champ magnétique appliqué s'écrit alors :

$$\rho(B) = \frac{\rho(0)}{1 + (\omega_{Larmor} * \tau_t)^2} \quad (3.1)$$

où $\rho(0)$ est la polarisation circulaire mesurée à champ nul (qui dépend fortement du système), et $1/\tau_t = 1/T_{rad} + 1/T_2$. Cette méthode a été utilisée pour la première fois par Garbuzov en 1971, sur des cristaux dopés de AlGaAs [49, 34]. Elle a l'avantage de permettre de mesurer des temps très courts ($\sim 10^{-10}$ s), grâce à des mesures en régime stationnaire, et en appliquant des champs relativement faibles. Cependant elle n'est utilisable que pour des états photo-excités, et la détermination du temps de cohérence nécessite de connaître le temps de recombinaison, ainsi que la pulsation de Larmor.

Parmi les premières études utilisant l'EH dans les BQs, on peut citer Awschalom et al. en 2001 [40], qui l'appliquent aux excitons dans des BQs d'InAs/GaAs. Cependant, cette méthode ne permet pas de quantifier le facteur de Landé g_X de l'exciton, ni son inhomogénéité. Elle permet donc uniquement d'obtenir le produit $g_X T_2^* \sim 200$ ps à $T = 6$ K, où T_2^* est certainement dominé par le déphasage inhomogène des spins, qui n'est pas quantifiable. Ce résultat illustre les limites de cette méthode, qui ne s'applique dans tous les cas qu'à des systèmes où la recombinaison radiative fait figure de limite temporelle.

Nous reviendrons sur l'effet Hanle dans le chapitre 4, mais tout d'abord nous nous intéressons à d'autres mesures optiques, qui permettent d'outrepasser les limites de celui-ci.

3.1.2 Mesure du taux de polarisation circulaire résolue en temps

Grâce au développement des détecteurs déclenchés (*streak camera*), il est possible de résoudre temporellement le TPC de la luminescence, sur des temps de l'ordre de la picoseconde à la nanoseconde. Dans ce cadre, on peut citer l'étude de Urbaszek et al. [81], sur des BQ InAs/GaAs, dopées p , soumises à un champ transverse. Cette méthode permet d'observer l'évolution de la projection du spin de l'électron (de l'état

excité trion) suivant l'axe optique z , qui oscille dans le temps (cf. figure 3.1). Elle permet donc de quantifier son facteur de Landé, et son inhomogénéité, qui va induire un déphasage en un temps $T_2^* \sim 1\text{ns}$.

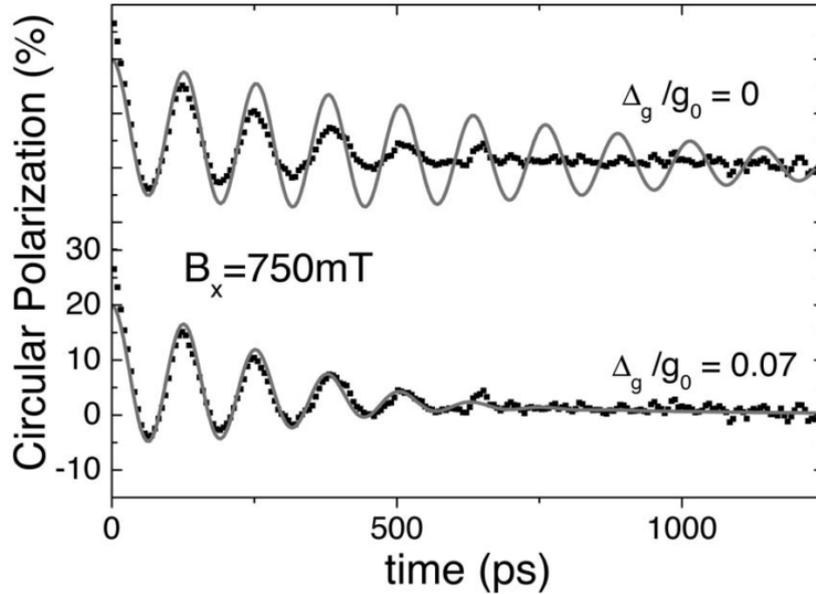


FIGURE 3.1 – Évolution temporelle du TPC de la luminescence pour un champ transverse de 750 mT de BQ d'InAs/GaAs dopées p, excitée de façon non-résonante. Les données sont modélisées avec et sans prendre en compte la dispersion du facteur de Landé de l'électron Δ_g/g_0 . Figure de la référence [81].

Cependant, cette méthode repose encore une fois sur la détection de la recombinaison d'un état excité, et elle ne permet pas d'avoir accès aux dynamiques longues du système (notamment les temps de cohérence quasi homogènes T_2), au-delà de la nanoseconde.

3.1.3 Pompage résonnant et population piégée

Une autre méthode, proposée par Warburton et al. en 2009, permet d'avoir accès au T_2 du spin d'un porteur résident (un trou dans une BQ unique d'InAs/GaAs)[21]. Encore une fois, on applique un champ transverse à l'échantillon, ce qui lève la dégénérescence des projections de spin des états fondamentaux et excités de la BQ. On adresse ensuite trois des états propres (système en Λ), grâce à deux lasers continus polarisés linéairement. Ces deux lasers, pompe et sonde, adressent les transitions entre les états $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ respectivement (cf. figure 3.2.a).

Lorsque la pompe est accordée à la résonance de la transition $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$, on observe un creux dans l'absorption résonnante de la sonde sur $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$. Cette transparence induite (ou *dark state*) est due à une interférence destructive des populations

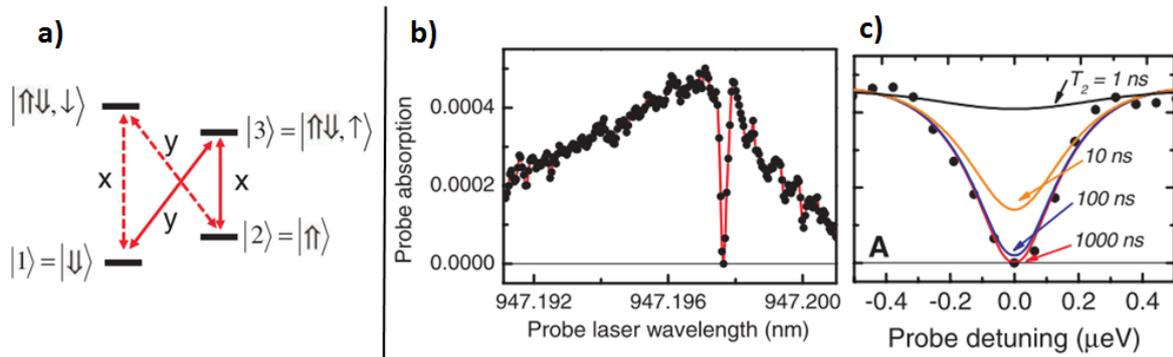


FIGURE 3.2 – a) Schéma décrivant le système en Λ adressé dans les expériences de Warburton, les états sont exprimés dans la base propre du Hamiltonien Zeeman. b) Absorption du faisceau sonde, la pompe étant résonnante à la transition $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$. On observe effectivement un dark state, à la résonance de $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$. c) Dépendance de la profondeur de ce creux avec le temps de cohérence T_2 entre $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Figures provenant de la référence [21].

induites par les deux faisceaux. L'apparition de ce creux nécessite la cohérence des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$, et le temps de cohérence influe sur sa profondeur. Ainsi, les auteurs sont capables d'évaluer un temps de cohérence T_2 du spin du trou supérieur à 100 ns. Cependant, la résolution de la méthode ne leur autorise qu'un raisonnement probabiliste au-delà de cette borne inférieure, d'où le besoin d'études complémentaires¹.

3.1.4 Blocage de phase

Une expérience novatrice, proposée en 2006 par Grelich et al. [52], permet de mesurer la cohérence du spin d'un état fondamental. Dans ces expériences, c'est le spin de l'électron qui est étudié, dans un ensemble de BQs dopées n . Il est expliqué que le long temps de cohérence de ce spin permet, grâce à la périodicité de l'excitation, d'adresser des modes discrets de précession, et ainsi de distinguer les contributions homogènes et inhomogènes du déclin du spin. Cette méthode permet aux auteurs d'estimer un temps de cohérence du spin de l'électron de $T_2 \approx 3\mu s^2$.

Nous allons dans ce chapitre exposer les principes et implications de cette méthode appliquée à notre système, un ensemble de BQ dopées p . Ainsi, nous verrons comment nos expériences nous permettent d'affiner les estimations du T_2 quasi homogène du spin de trou confiné dans une BQ d'InAs/GaAs, système qui pourrait présenter plus d'intérêt que l'électron pour la réalisation d'un qubit.

1. Il a été proposé récemment l'extension de cette méthode à un train d'excitation pulsée, ce qui pourrait amener à une amélioration de ce type de mesures (cf Singh *arXiv* : 1506.06251).

2. Cette estimation est par ailleurs confirmée par les expériences de Yamamoto en 2010 [107], qui utilise la technique de spin-echo, sur laquelle nous reviendrons.

3.2 Dynamique de spin en champ transverse et principe du blocage de phase

Nous réalisons nos expériences sur un ensemble de BQ dopées p . Cependant, l'échantillon présente une certaine disparité des facteurs de Landé g_h et g_e . Ainsi, le signal pompe sonde dû à la précession d'un ensemble de spins se désynchronise rapidement (déphasage inhomogène). Cependant, en régime d'excitation périodique, le laser induit une resynchronisation de la précession observée. Nous examinons d'abord, grâce à une description macroscopique, comment se déroule cette synchronisation d'un ensemble de spins avec le laser exciteur.

3.2.1 Précession de spins en champ transverse : une description macroscopique

Dans cette expérience, nous étudions (grâce à un faisceau sonde) l'évolution temporelle d'un ensemble d'états de spin créés par un faisceau pompe. L'échantillon étudié étant dopé p , un laser pompe polarisé circulairement σ^+ excite de façon résonnante la transition fondamentale $\hbar\omega_0 = 1,35$ eV d'une BQ contenant un trou dans l'état $|h \downarrow\rangle$ de spin $-3/2$, et crée un état trion $|T \downarrow\rangle$, avec une projection $-1/2$ du moment cinétique total J conforme aux règles de sélection optique décrites dans la section 1.3 (et rappelées sur la figure 3.3). Après recombinaison de cet état trion, seul le trou subsiste. Lorsqu'on applique un champ magnétique \vec{B}_x perpendiculaire à l'axe de quantification z du spin, il induit une précession des spins, aussi bien de l'état excité que de l'état fondamental, ce qu'on peut décrire de façon macroscopique grâce aux équations :

$$\frac{d\vec{S}_T}{dt} = \frac{g_e\mu_B}{\hbar}(\vec{B}_a + \vec{B}_n^e) \times \vec{S}_T - \frac{\vec{S}_T}{\tau_r} \quad (3.2)$$

$$\frac{d\vec{S}_h}{dt} = \frac{\hat{g}_h\mu_B}{\hbar}(\vec{B}_a + \vec{B}_n^h) \times \vec{S}_h + \frac{S_T^z \vec{e}_z}{\tau_r} - \frac{\vec{S}_h}{T_2} \quad (3.3)$$

La dynamique de précession se fait dans le plan (z, y) , ce qui induit une oscillation sinusoïdale de la composante de spin S_z observée grâce à l'expérience (cf schéma 3.3.a).

Dans ces équations, μ_B représente le magnéton de Bohr, les temps τ_r et T_2 permettent de prendre en compte la recombinaison radiative du trion, et le temps de cohérence homogène du trou. On remarque que la précession est assujettie à un champ $\vec{B}^T = \vec{B}_a + \delta\vec{B}_n^T$ pour le trion, où l'on doit prendre en compte le champ appliqué \vec{B}_a mais aussi le champ Overhauser $\delta\vec{B}_n^T$, qui est différent d'une BQ à l'autre, et induit un déphasage (décrit dans 1.4.2) sur une échelle de temps de 1 ns pour le trion. Les fluctuations de la polarisation des spins nucléaires ont aussi un effet sur le trou, qui est moindre du fait des constantes hyperfines plus faibles. Cependant, dans nos échantillon,

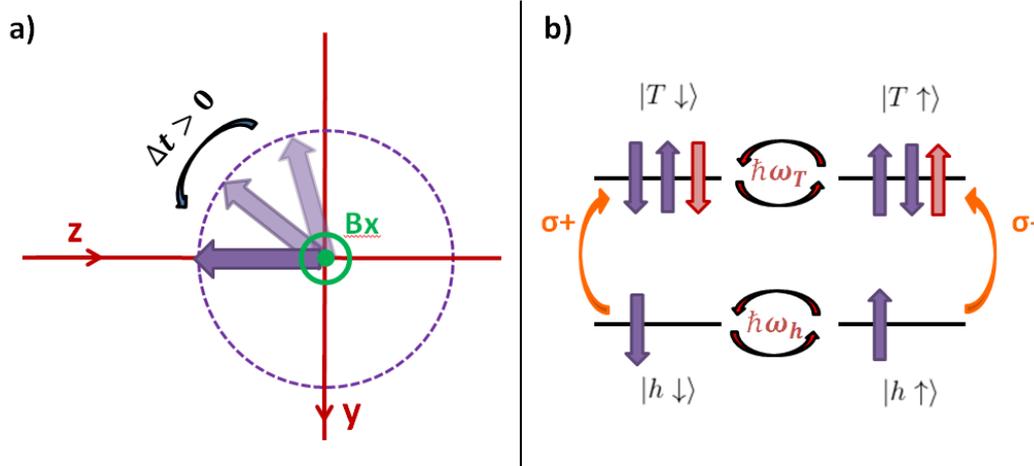


FIGURE 3.3 – (a) Schéma de la géométrie de l'expérience en champ transverse. Les faisceaux sont suivant z . Le champ magnétique \vec{B}_x est transverse, parallèle à l'axe x . La précession des spins se fait dans le plan yz

(b) Rappel des règles de sélection optique (dans la base des états quantifiés selon l'axe optique z). L'introduction du champ transverse que ces états, photo-excités à la résonance par le laser, sont une superposition cohérente des états propres du système (quantifié selon x par le hamiltonien Zeeman).

c'est la variation de g_e et \hat{g}_h qui est la principale responsable du déphasage.

Comme nous allons le voir, en champ transverse ($> 100mT$) ce sont les fortes disparités du facteur de Landé des BQ de l'échantillon qui vont induire le déphasage de la précession des spins. L'inhomogénéité de g_h^\perp (et donc la dispersion des fréquences de précession) étant particulièrement importante, le signal d'ensemble des spins de trou relaxe rapidement vers zéro, et masque totalement le temps de cohérence homogène T_2 que nous voulons mesurer. Heureusement, nous allons voir que la synchronisation de cette précession avec la répétition du laser pompe, va nous permettre de circonscrire ce problème.

3.2.2 Principe du blocage de phase

Nous étudions la précession des spins grâce à l'expérience pompe-sonde décrite dans le chapitre 2. Lors de la mesure, le signal obtenu est démodulé et intégré sur 500 ms, soit plus de 38 millions de fois la période du laser. Ainsi, pour obtenir un signal non nul, il faut que la *même expérience* soit répétée à l'arrivée de chaque pulse laser.

Le faisceau laser étant aligné suivant l'axe z , l'impulsion pompe ne peut créer un trion dans la BQ que si le spin du trou résidant est anti-parallèle au spin du trou photo-excité, afin de ne pas violer le principe d'exclusion de Pauli. Ainsi, les BQ ayant une période de précession du trou incommensurable à la période de répétition du laser

ne sont pompées que peu efficacement. A l'inverse, les BQ dans lesquelles le spin du trou précesse un nombre entier de fois pendant le délai entre deux impulsions, sont *pompées* à nouveau lors de l'arrivée de la nouvelle impulsion. Ces BQ sont excitées à chaque impulsion, et c'est leur contribution qui est largement dominante dans le signal. On peut comparer ce processus à une résonance de notre système en réponse à une excitation périodique, mais cette image n'est pas exacte, car dans notre cas, on n'assiste pas à l'amplification du signal provenant d'une BQ en phase avec l'excitation, mais plutôt à l'exclusion des BQs qui sont déphasées. Les BQs qui participent au signal respectent la condition de blocage de phase :

$$n \cdot \frac{2\pi}{\omega_h} = \frac{2\pi}{\omega_L} \quad (3.4)$$

où $\omega_h = g_h^\perp \mu_B B_a^x / \hbar$ est la pulsation du spin du trou dans la BQ, $\omega_L = \frac{2\pi}{13.1} \text{ ns}^{-1}$ est la pulsation du laser, et n est un nombre entier. Même pour des champs modérés, l'écart en g_h^\perp des modes (avec des n différents) est faible, et de nombreux modes participent au signal. Pour augmenter encore la sélection en g_h^\perp , on sépare l'impulsion pompe en deux impulsions successives, séparées d'un délai T_D . On observe maintenant les BQs dont le spin fait un nombre entier de tours pendant les délais entre les impulsions.

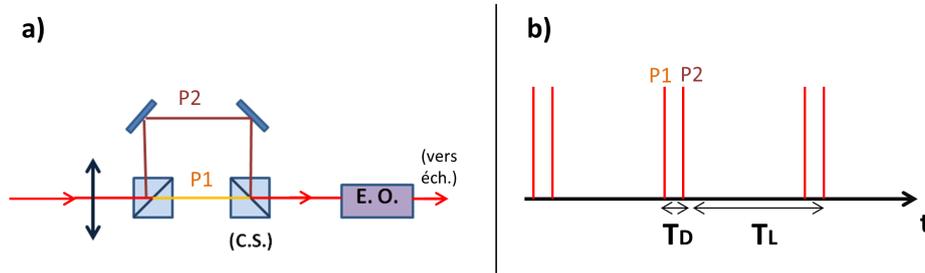


FIGURE 3.4 – Dispositif permettant de diviser la pompe en deux impulsions successives $P1$ et $P2$. Le train d'impulsions résultant est montré à droite, chaque couple d'impulsions est séparé par un délai T_L , période de répétition du laser, et les deux impulsions sont séparées de T_D .

Les deux conditions de blocage de phase sont maintenant :

$$n \cdot \frac{2\pi}{\omega_h} = T_D \quad (3.5)$$

$$m \cdot \frac{2\pi}{\omega_h} = (T_L - T_D) \quad (3.6)$$

où n et m sont deux entiers. Pour que ces deux conditions ne soient pas mutuellement exclusives, il faut impérativement que le délai T_D soit commensurable à T_L (l'écart à cet impératif est étudié dans [132]). Dans le cadre de cette étude, on utilise $T_D = \frac{T_L}{9} = 1,46 \text{ ns}$. Cette deuxième condition de blocage permet de sélectionner un sous-ensemble dans l'ensemble de BQs respectant la première condition, et donc d'être bien plus sélectif. De nombreux modes participent tout de même au signal, et ils se

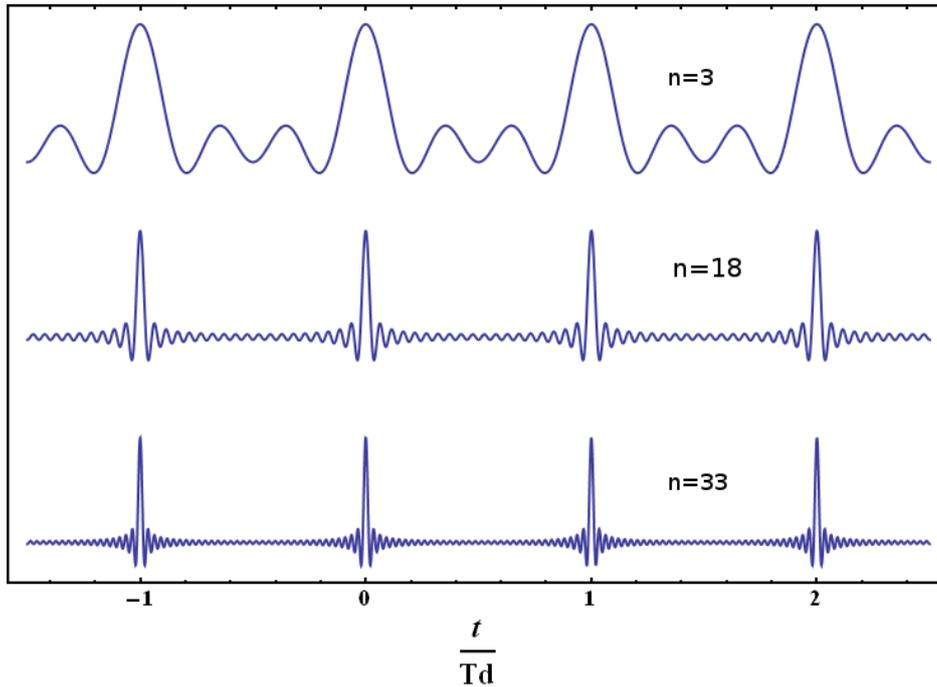


FIGURE 3.5 - Resynchronisation d'une somme de modes $\sum_{i=1}^n \cos(i \frac{2\pi}{T_D} t)$ pour $n = 3; 18; 33$ modes. On remarque qu'on a bien une resynchronisation de tous les modes autour des temps $t = l.T_D$, et donc une amplitude de l'oscillation qui augmente autour de ces temps.

désynchronisent sur un temps bien plus court que le temps de cohérence homogène que nous souhaitons mesurer. Mais l'ajout de la deuxième condition de synchronisation implique aussi une resynchronisation des spins participant au signal tous les $t = l.T_L$ et donc une resynchronisation au délai $t = T_L - T_D$, qui est présente même dans le cas d'un fort nombre de modes (cf. figure 3.5). C'est grâce à l'observation de ces resynchronisations (ou *répliques*), que nous allons pouvoir quantifier le T_2 du spin du trou.

3.2.3 Signal de dichroïsme circulaire photo-induit dans les conditions de blocage de phase

Dans cette section, nous allons présenter le signal obtenu expérimentalement sur l'échantillon 74K31, et vérifier qu'il présente bien les caractéristiques d'un blocage de phase, afin de pouvoir le modéliser par la suite. Nous commencerons d'abord par le cas d'une excitation par un train d'impulsions simple (avec un délai $T_L = 13,1$ ns entre chaque impulsion), puis examinerons le cas d'un train d'impulsions double (séparées de $T_D = 1,46$ ns).

Sauf précisions supplémentaires, les courbes présentées ici et dans la suite du chapitre sont obtenues par l'excitation d'un laser résonant d'énergie 1,36 eV, d'une puissance pompe de 5 mW (soit 4.10^8 eV par impulsion, ou $2.6 \mu J/cm^2$ avec un diamètre de spot de $50 \mu m$). Cette excitation est modulée en polarisation $\sigma + / \sigma -$ à 300 kHz (une

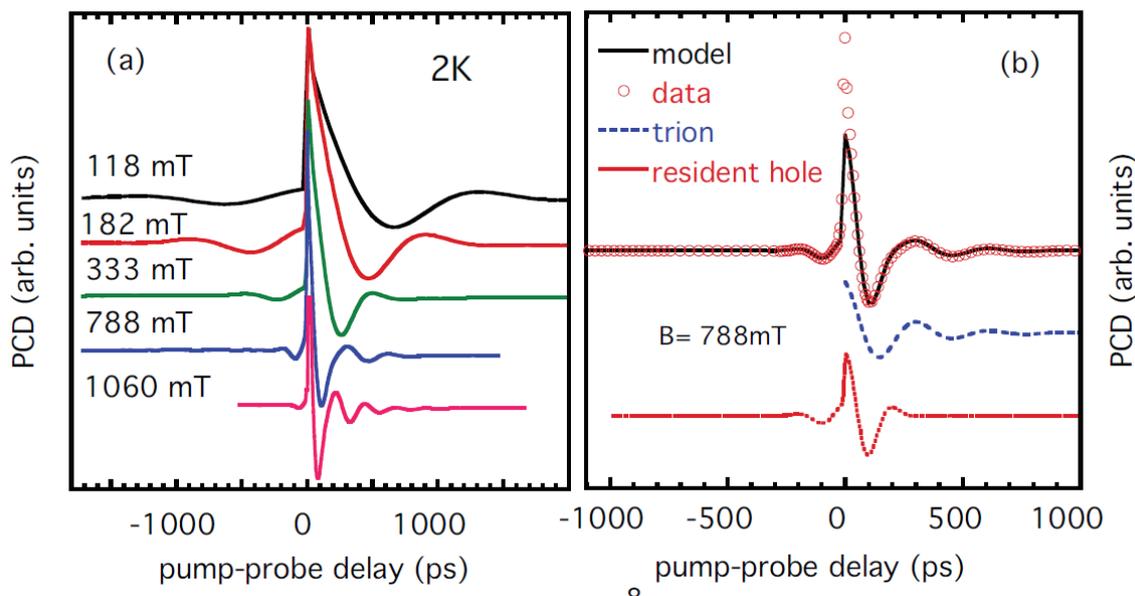


FIGURE 3.6 – Signal de PCD, lors d'une excitation par une impulsion pompe, avec un échantillon dopé p soumis à un champ transverse. On peut voir (figure a) que malgré la désynchronisation rapide des spins aux délais $\gtrsim 1$ ns, le signal présente une resynchronisation aux délais négatifs, qui prouve le blocage de phase. La figure b illustre comment les ajustements permettent de distinguer les contributions au signal dues au spin du trou d'un part, et du trion d'autre part.

fréquence trop rapide pour établir une DNP). L'intensité du faisceau sonde est modulée par un obturateur mécanique à 370 Hz. Le signal analysé est le signal de Dichroïsme Circulaire Photoinduit (ou PCD), tel qu'il est décrit dans la section 2.2.

Excitation par un train d'impulsions simple

La dépendance temporelle du signal obtenu pour différents champs transverse est présentée sur la figure 3.6. Nous pouvons observer des oscillations du signal de PCD au cours du temps, signe d'une précession de spins. La fréquence des oscillations augmente bien avec le champ appliqué \vec{B}_a . On remarque aussi, notamment grâce à la figure 3.6.b), que le signal aux délais positifs présente bien deux contributions : une composante transitoire provenant du spin du trion, et une provenant du spin du trou résident dans la BQ.

On peut ajuster séparément l'évolution de ces deux contributions à partir du délai $t = 0$ (arrivée de la pompe). La contribution du trion présente un déphasage lent, et décroît avec le temps radiatif³ $\tau_r = 700$ ps [47]. Le trou résident présente une

3. Ce temps radiatif a été obtenu par une étude à la résonance (une étude hors résonance

oscillation de période plus courte, mais qui se déphase nettement plus rapidement. Le détail des informations apportées par les ajustements sur ces temps de déphasage sera présenté dans la section suivante.

Pour l'instant, on se concentre sur la caractéristique de ces courbes qui confirme la *mode-locking*, à savoir la resynchronisation visible aux délais négatifs. Ces délais correspondent aux temps précédant l'arrivée d'une nouvelle impulsion, et donc $t \approx n.T_L$, ou encore $t = n.T_L + \Delta t$ où $\Delta t < 0$ est le délai pompe-sonde tel qu'il est défini sur les courbes. Pour ces délais négatifs, $\Delta t \approx -1\text{ns}$, la lecture de la sonde se fait à un délai $T_L + \Delta t \gg \tau_{rad}$ et donc tous les trions se sont recombines. Ce signal est associé seulement au spin de trous. Malgré la désynchronisation totale des spins des trous environ 1 ns après l'arrivée de l'impulsion pompe, on observe une resynchronisation spontanée avant l'arrivée de la nouvelle impulsion, ce qui confirme bien les hypothèses de blocage de phase faites dans la section précédente. On note que la BQ qui est *repompée* contient bien un trou avec un spin opposé au spin du trion photo-créé, mais que leurs projections sont de même signe sur le signal de PCD, car : $PCD \propto (\langle S_z^t \rangle - \langle S_z^h \rangle)$. Ce signal de resynchronisation nous donne une première information sur le T_2 homogène : $T_2 \gg T_L$. En effet, dans le cas contraire, cette resynchronisation serait d'une amplitude quasi négligeable.

Excitation par un train d'impulsions doubles

Cependant, pour mieux isoler cette resynchronisation, nous dédoublons l'impulsion pompe, de façon à avoir les conditions de blocage de phase décrites par les équations (3.5 et 3.6). Le signal obtenu (pour un champ $B_a^x = 384$ mT) est montré figure 3.7.

On y perçoit distinctement l'arrivée des deux pompes aux délais $t = 0$ et $t = T_D = 1,46$ ns, et la resynchronisation aux délais $t = 2T_D$ et $t = -T_D$, ainsi qu'avant l'arrivée de l'impulsion à ($t = 0^-$). On peut aussi voir sur la figure 3.8 que conformément aux principes évoqués précédemment, la position dans le temps de la réplique à $t = -T_D$ ne change pas malgré l'augmentation du champ magnétique.

Cependant, la fréquence de l'oscillation de la réplique (qui est la fréquence moyenne de l'ensemble des fréquences qui y contribuent) évolue fortement avec le champ, ainsi que le temps de déphasage. De plus, son étendue temporelle reste restreinte, signe d'une forte inhomogénéité de l'échantillon, que nous allons devoir quantifier afin de tirer parti de ces données pour estimer le T_2 homogène.

peut présenter un temps radiatif très différent [72]). Et il a été montré que dans la gamme de champs utilisés, le temps radiatif observé à la résonance n'évolue pas avec le champ.

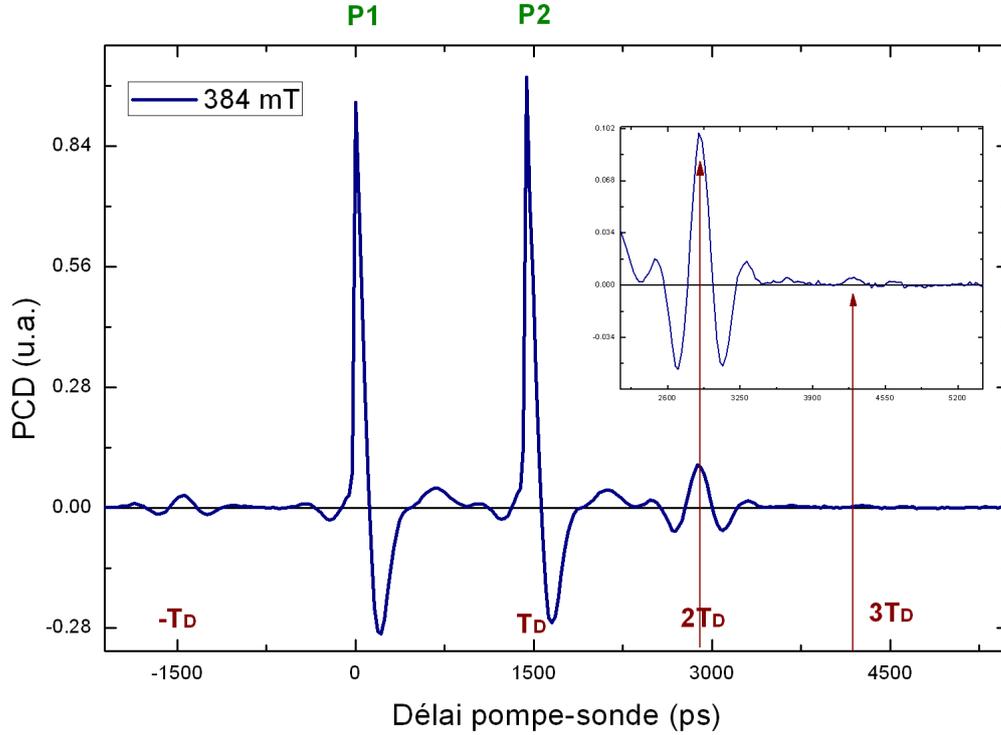


FIGURE 3.7 – Signal de PCD, lors d’une excitation par deux impulsions pompes σ_+ , pour l’échantillon de BQ d’InAs dopées p soumis à un champ transverse de 384 mT, excité à 1,36 eV. On y observe distinctement l’arrivée des deux pompes aux délais $t = 0$ et $t = T_D$, ainsi que les répliques aux délais $t = -T_D$ et $t = 2T_D$, et une réplique bien plus faible au délai $t = 3T_D$ (cf. zoom dans l’encadré).

3.2.4 Évolution des facteurs de Landé et de leur distribution

Dans cette section, nous allons voir comment l’analyse en champ des deux composantes temporelles du régime transitoire peut nous donner une première information sur les facteurs de Landé g_h^\perp et g_e , et comment le blocage de phase nous permet d’avoir une deuxième information, plus fine, sur le g_h^\perp associé au trou. La première analyse sera faite dans un régime qualifié de *fort champ*, pour lequel beaucoup de modes sont synchronisés. La deuxième sera exécutée dans un régime de *bas champ* ($B_a^x < 250$ mT), pour lequel peu de modes sont synchronisés.

Pour commencer, il est important de préciser que le facteur g_e associé au spin de l’électron (et donc du trion) est isotrope, tandis que le g_h du trou est anisotrope et doit être exprimé par le tenseur :

$$\begin{bmatrix} g_h^{\perp,x} & 0 & 0 \\ 0 & g_h^{\perp,y} & 0 \\ 0 & 0 & g_h^{\parallel} \end{bmatrix}_{(x,y,z)} \quad (3.7)$$

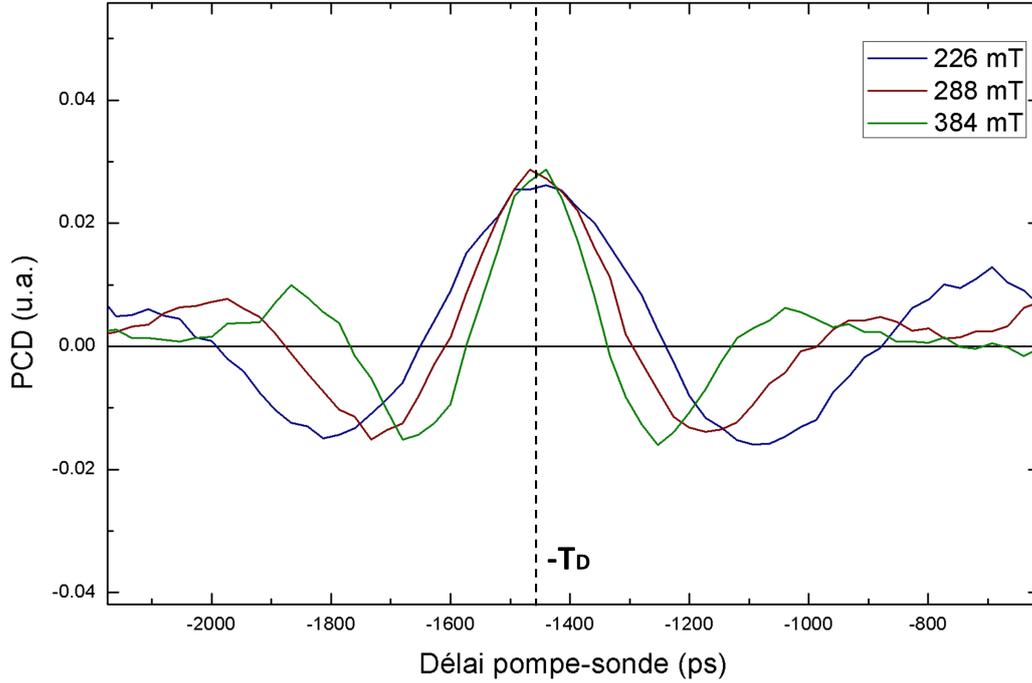


FIGURE 3.8 – Signal de PCD, lors d’une excitation par une impulsion pompe, pour un échantillon de BQ dopées p soumis à un champ transverse de 226 à 384 mT. On remarque que lorsque le champ appliqué change, la réplique reste centrée sur le même délai ($t = T_L - T_D$), bien que la période et l’amortissement de l’oscillation changent.

Cette anisotropie est très importante dans le cas des BQ InAs/GaAs, car des études [8, 108] rapportent des $g_h^{\parallel} = 3$, alors que $g_h^{\perp} \approx 0$.

Dans notre cas, l’oscillation du spin du trou est clairement visible sur les courbes de PCD, et donc le facteur g_h^{\perp} ne peut être nul ; cependant, il varie fortement d’une BQ à l’autre. Dans cette partie, on supposera que le champ est strictement perpendiculaire à z , et on utilisera donc dans la suite la notation g_h pour désigner g_h^{\perp} .

Régime de champ fort

On étudie tout d’abord les facteurs de Landé grâce au signal obtenu juste après l’arrivée de la pompe. En effet, comme le montre la figure 3.9, l’ajustement de la courbe permet de séparer les contributions dues au trou et au trion, notamment pour des champs importants (>300 mT). De plus, alors que les délais négatifs nous permettent d’observer uniquement les BQ respectant les conditions de blocage de phase, toutes les BQ de la distribution participent au signal aux délais positifs. En effet, toutes les BQ sont dans l’état fondamental avant l’arrivée de l’impulsion, et presque toutes sont alors excitées par cette impulsion (cependant, seules celles qui sont excitées efficacement à chaque impulsion contribuent au signal aux délais négatifs). Ainsi, aux délais positifs,

on observe en moyenne la précession de l'ensemble des spins de la distribution. La fréquence de l'oscillation observée est donc la fréquence attribuée au g_0 moyen de la distribution. L'oscillation s'amortit rapidement avec le déphasage des spins, causé par l'inhomogénéité du facteur de Landé d'une part, et par les fluctuations de la polarisation nucléaire d'autre part.

On ajuste les précessions par l'expression :

$$PCD(t) = A_h \cos(\omega_h t) \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau_h}\right)^2\right) + A_e \cos(\omega_e t) \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau_e}\right)^2\right) \quad (3.8)$$

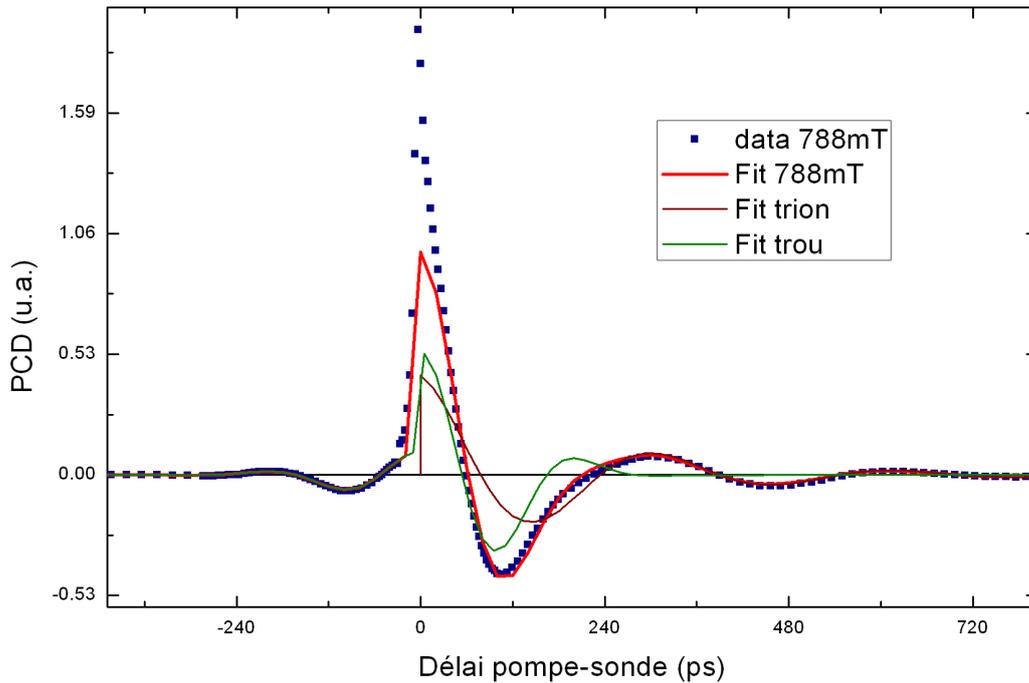


FIGURE 3.9 – Signal PCD obtenu avec une seule impulsion pompe. Les ajustements permettent de distinguer clairement la contribution transitoire associée au spin du trion et celle associée au spin du trou résident.

L'ajustement de la fréquence de précession pour des champs allant de 0,3 à 1,2 T permet donc, grâce à la relation de Larmor : $\hbar\omega_i = \langle g_i \rangle \mu_B B_a^x$, d'obtenir avec une grande précision : $\langle g_h \rangle = 0,41$ et $\langle g_e \rangle = 0,30$ (cf. figure 3.10.a). La quantification du temps d'amortissement τ_i permet d'en séparer les deux contributions. On suppose la distribution des facteurs de Landé de notre échantillon comme gaussienne, suivant la densité de probabilité $p(g_x)$:

$$p(g_j) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Delta_{g,j}} \exp\left(\frac{-(g_j - \langle g_j \rangle)^2}{2(\Delta_{g,j})^2}\right) \quad ; \quad j = \{h, T\} \quad (3.9)$$

On considère également une distribution gaussienne pour le champ nucléaire (suivant le calcul de la section 1.4.2). L'élargissement des pulsations de précession

s'écrit alors : $\Delta\omega = \sqrt{(\Delta\omega_n)^2 + (\Delta\omega_g)^2}$, où la première contribution a pour origine le champ nucléaire, et la deuxième les inhomogénéités de g . Le temps de déphasage des spins des trions ou des trous peut alors s'écrire⁴ [81] :

$$\tau_j^* = \frac{T_{\Delta,j}}{\left(1 + 2\left(\frac{\Delta_{g,j}}{\langle g_j \rangle} \frac{B_a^x}{\Delta_{B,j}}\right)^2\right)^{\frac{1}{2}}} \quad ; \quad j = \{h, T\} \quad (3.10)$$

où $\Delta_{g,j}$ est la largeur de la distribution de g_j , $\Delta_{B,j}$ décrit les variations du champ nucléaire effectif (vu par le porteur j) d'une BQ à l'autre (cf. section 1.4.2), et $T_{\Delta,j} = \frac{\hbar}{\langle g_j \rangle \mu_B \Delta_{B,j}}$ est le temps caractéristique du déphasage induit uniquement par celui-ci, précédemment estimé pour cet échantillon à $\Delta_{B,e} \sim 50$ mT [45].

On comprend donc qu'à *fort champ*, i.e. $B_a^x \gg \Delta_{B,j} \frac{\langle g_j \rangle}{\Delta_{g,j}}$, le taux de déphasage retrouve un caractère linéaire, puisque : $\frac{1}{\tau_j} \approx \sqrt{2} \frac{\Delta_{g,j}}{\langle g_j \rangle \Delta_{B,j} T_{\Delta,j}} B_a^x$. Même si le traitement peut se faire de façon complètement analogue pour le trion et pour le trou, cette linéarité (signe que le déphasage inhomogène prévaut sur le champ nucléaire) ; s'obtient effectivement à des champs bien plus bas pour le trou, car : $\Delta_{B,h} \sim \frac{\Delta_{B,e}}{10}$ [36]. L'ajustement de ces temps de déphasage (cf. figure 3.10.b) permet de trouver les largeurs de distributions suivantes : $\frac{\Delta_{g,h}}{\langle g_h \rangle} = 0,34$ et $\frac{\Delta_{g,e}}{\langle g_e \rangle} = 0,09$. On remarque que l'inhomogénéité (et le déphasage associé) des g_e est bien plus faible que pour g_h , et donc le déphasage de la précession des trions reste, pour une large gamme de champs, dominé par les fluctuations du champ nucléaire. A cela, il faut bien entendu ajouter le déclin de la population du trion dû aux recombinaisons radiatives.

Régime de bas champ

La précédente étude nous a permis d'évaluer une distribution gaussienne large des valeurs de g_h . Or, les conditions de blocage de phase vont nous permettre d'observer spécifiquement certains modes de précession de cette distribution, dans le cas d'une excitation par un train périodique de deux impulsions (séparées par un délai T_D), et à *bas champ*. Dans cette configuration, les conditions de blocage de phase sont alors très sélectives, et les g_h des modes les respectant sont alors très écartés (au regard de la largeur de la distribution). Dans ces conditions, on peut observer un régime dans lequel seul un mode (celui de pulsation $\omega_1 = 2\pi \frac{9}{T_L}$), associé à *un seul* g_h , est modelocké et participe au signal aux délais négatifs⁵. C'est le cas représenté sur la figure 3.11.a). On remarque que seule la fréquence $1/T_D$ (qu'on pourrait appeler *fondamentale*) apparaît sur le signal aux délais négatifs, pour des champs $\lesssim 100$ mT.

4. On notera que ce temps de déphasage inhomogène, est souvent appelé "temps de cohérence inhomogène" et noté T_2^* . Nous évitons cette notation pour éviter la confusion avec le temps de cohérence homogène d'un spin unique.

5. On note que les pulsations fractionnaires $\omega_m = \frac{1}{m} 2\pi \frac{9}{T_L}$, ont une contribution au signal nulle (pour les modes avec m pair), ou négligeable lorsque le signal est obtenu en moyennant un nombre d'impulsions sonde $\gg m$.

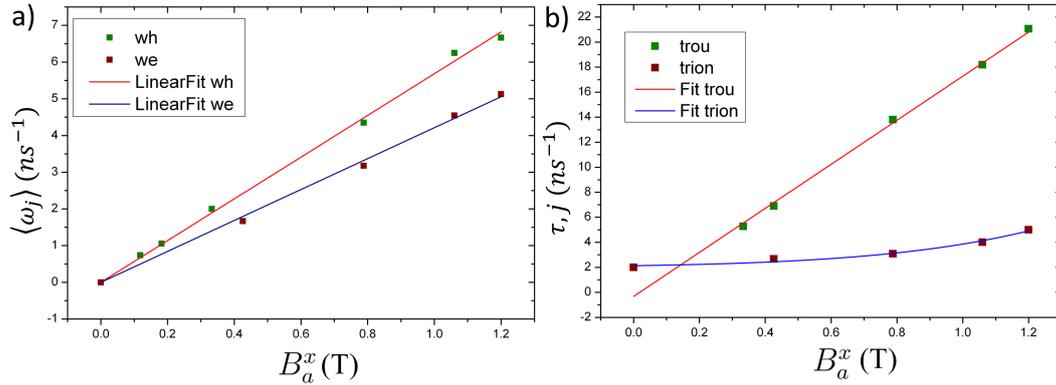


FIGURE 3.10 – a) Ajustement de la pulsation de précession en fonction du champ transverse B de 0 à 1,2 T. La pulsation observée est la pulsation moyenne de la distribution. L’ajustement donne $g_{h,0}^\perp = 0,41$ et $g_{t,0} = 0,30$. b) Ajustement du taux de déphasage de la précession en fonction du champ transverse. Ce taux nous permet, grâce à l’équation (3.10), d’obtenir les largeurs : $\frac{\Delta g_{h,e}}{\langle g_h \rangle} = 0,34$ et $\frac{\Delta g_{e,e}}{\langle g_e \rangle} = 0,09$, en ayant supposé $T_{\Delta,e} = 500$ ps et $T_{\Delta,h} = 5$ ns. Cette différence de $T_{\Delta,j}$ produit une différence importante sur la forme des fonctions d’ajustement.

Ce régime est parfois appelé *spin amplification*, par des équipes concurrentes [130], sous l’hypothèse qu’une polarisation nucléaire suivant l’axe du champ x favorise son établissement. Or le couplage du trou résident aux noyaux est faible, et nous n’avons pas, dans cette étude, de signes allant dans ce sens, et nous interpréterons nos données dans le cadre du blocage de phase. Selon les principes du blocage de phase, cette fréquence doit rester inchangée avec le champ. Cependant, on remarque une légère variation de la fréquence de précession, ainsi qu’un très faible amortissement, que nous attribuons à la non exactitude de la commensurabilité des temps T_L et T_D du train d’impulsions (T_L/T_D n’est pas exactement égal à 9).

On remarque également la forte variation de l’amplitude du signal avec le champ. Or, si on trace le g_h respectant les deux conditions de blocage de phase (3.5) pour ces trois champs, avec la distribution estimée grâce à l’étude précédente, on obtient la figure 3.11.b). On peut y voir que les g_h solutions correspondent à différentes densités de probabilité dans l’échantillon, et donc à différentes amplitudes de signal.

Lorsque l’on fait évoluer le champ, on peut parcourir la distribution de g_h en gardant une pulsation de Larmor fixe, et il est ainsi possible de reconstituer la densité de probabilité à partir de l’amplitude du signal qui est associé à chaque g_h (cf. figure 3.15). Les amplitudes sont conformes à la distribution gaussienne supposée pour les facteurs de Landé g_h .

Cependant, lorsqu’on augmente le champ au-delà de 150 mT, un deuxième mode, de fréquence double, participe au signal (cf. figure 3.12). Lorsque l’on augmente le champ, les g_h modelockés se *rapproche*, et ainsi dès 281 mT nous avons trois harmoniques dans notre signal (cf. figure 3.13), puis quatre à 387 mT (cf. figure 3.14). On peut voir que ces signaux de PCD aux délais négatifs sont très bien ajustés par une fonction

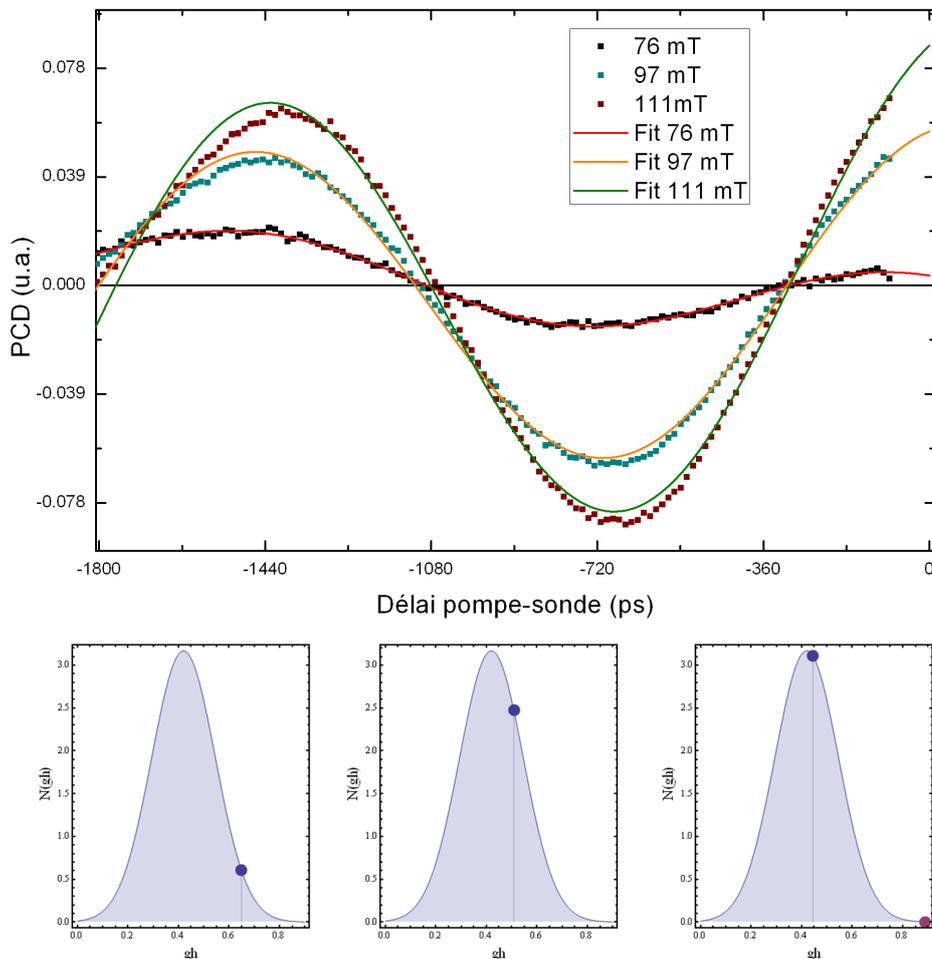


FIGURE 3.11 – a) Signal PCD aux délais négatifs, pour des champs transverse de 76 à 111 mT. Un seul mode est sélectionné par le blocage de phase. Ce mode est en phase avec l'arrivée de l'impulsion pompe suivante. L'amplitude du signal est attribuée à la densité dans l'échantillon du g_h qui est associé à un champ donné.

b) Solutions g_h respectant les conditions de blocages de phase, tracées sur la distribution gaussienne estimée ($g_{h,0} = 0,41$, $\Delta_{g,h} = 0,12$), pour les champs 76, 97 et 111 mT. On peut voir que les solutions correspondent à différentes densités de probabilité, et donc à différentes amplitudes du signal.

$s(t)$, somme de deux, trois puis quatre harmoniques (de fréquences $\omega_1, 2\omega_1, 3\omega_1, 4\omega_1$), d'amplitudes différentes :

$$s(t) = A_1 \cos(\omega_1 t) + A_2 \cos(2\omega_1 t) + \dots \quad (3.11)$$

En renormalisant l'amplitude de chaque harmonique, on peut voir que toutes suivent la distribution gaussienne de g_h estimée précédemment (cf. figure 3.15) : on observe que les distributions de g_h ainsi reconstruites, concordent très bien avec l'estimation faite précédemment (en particulier celle réalisée avec la fréquence fondamentale uniquement, pour laquelle on obtient : $g_{h,0} = 0,41$ et $\frac{\Delta_{g_h}}{g_{h,0}} = 0,34$).

Il convient de noter que cette valeur est bien supérieure à celle attendue pour le trou purement lourd (qui est souvent négligeable car $\sim 10^{-2}$). L'importance de la valeur moyenne du g_h observée dans notre étude s'explique probablement par l'importance du mélange de bande dans nos échantillon [122] et de l'anisotropie des BQ de l'échantillon [108]. Enfin la largeur importante de la distribution de g_h pourrait s'expliquer par la plus grande sensibilité de celui-ci aux champs électriques [29].

Nous allons pouvoir utiliser avec confiance les paramètres de la distribution de g_h obtenus grâce à ces deux méthodes, paramètres qui vont être d'une grande importance dans la suite de notre étude.

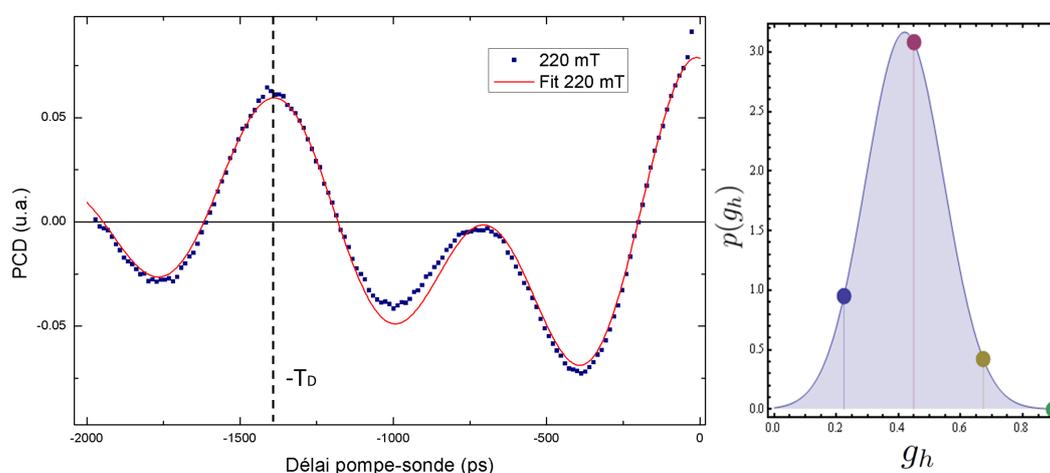


FIGURE 3.12 – Signal PCD aux délais négatifs, obtenus à $B_a^x = 220$ mT. Le signal est bien reproduit par la fonction $s(t)$ avec deux modes.

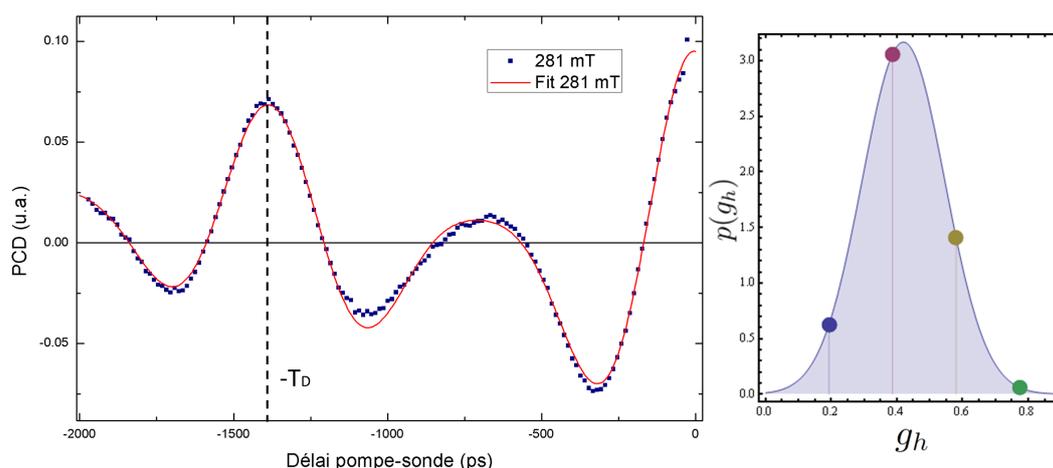


FIGURE 3.13 – Signal PCD aux délais négatifs, obtenus à $B_a^x = 281$ mT. Le signal est bien reproduit par la fonction $s(t)$ avec trois modes.

De plus, ce passage continu entre la situation à un seul mode et celle à nombreux modes permet de suivre progressivement comment le déphasage des modes (entre

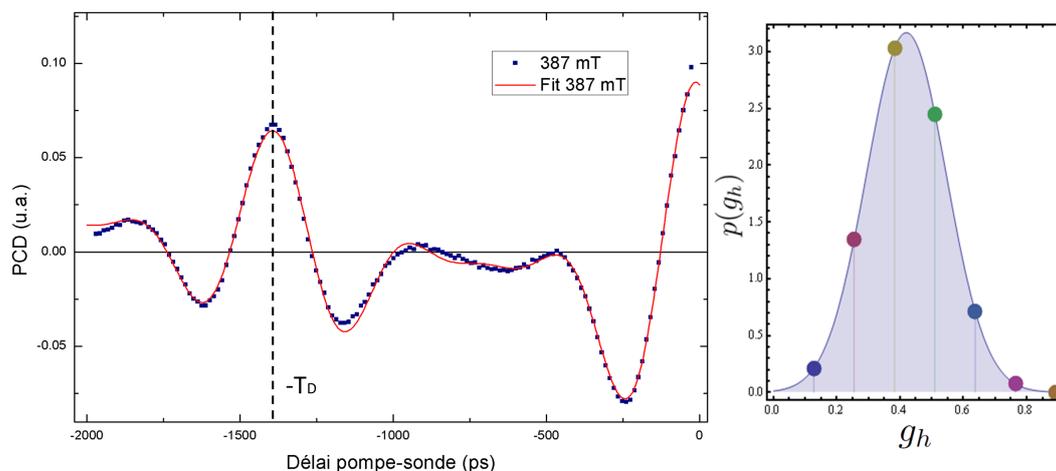


FIGURE 3.14 – Signal PCD aux délais négatifs, obtenus à $B_a^x = 387$ mT. Le signal est bien reproduit par la fonction $s(t)$ avec quatre modes.

$t = -T_D$ et $t = 0$) rend plus intéressante la description de *répliques*, comme schématisé sur la figure 3.5. Grâce à ces études complémentaires, dans deux régimes de champs foncièrement différents, nous avons donc une bonne compréhension de l'impact de l'inhomogénéité des facteurs de Landé sur notre signal de PCD. Nous allons maintenant pouvoir traiter bien distinctement le déphasage inhomogène (qui se fait sur des temps courts $\simeq 100$ ps), et le temps de cohérence homogène (sur des échelles de temps plus longues $\simeq \mu s$), grâce un modèle semi-classique développé dans le formalisme de la matrice densité.

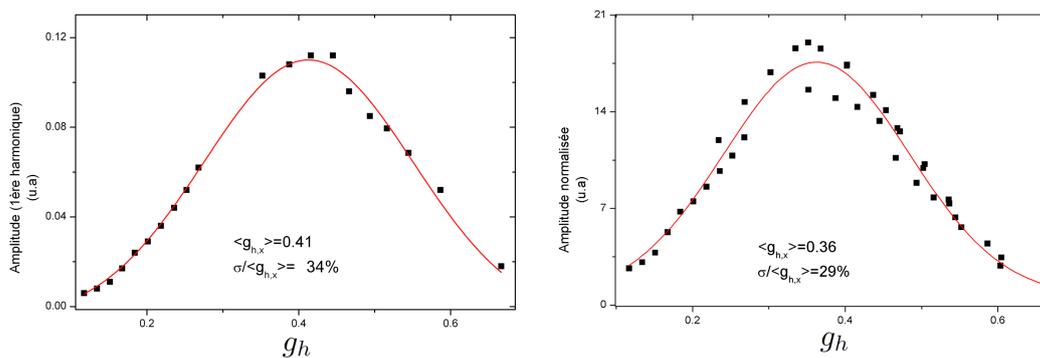


FIGURE 3.15 – Distribution gaussienne du facteur g_h , reconstituée grâce à l'amplitude de la première harmonique (a), et grâce aux amplitudes des différents modes (b).

3.3 Modélisation de la dynamique temporelle et évaluation du T_2 du spin du trou

Nous allons nous servir des informations recueillies dans la partie précédente, afin de prendre en compte les inhomogénéités, et ainsi calculer l'écart à la théorie de l'évolution d'un spin de trou dans une BQ unique. Cette théorie, développée dans le formalisme de la matrice densité, a été établie par Machnikowski en 2010 [85], en prenant en compte les spécificités du signal Kerr résolu en temps, qui est analogue au signal PCD. Nous en présenterons ici les principales étapes de calculs, et leur implantation dans une simulation, permettant de confronter les données au modèle.

3.3.1 Hamiltonien Zeeman et description du système

L'axe de quantification "naturel" de notre système, est l'axe z [001], qui est l'axe optique de l'expérience. Les règles de sélection optique (cf. figure 3.3) gouverne les transitions entre les états de la base $\{|T \uparrow\rangle, |T \downarrow\rangle, |h \uparrow\rangle, |h \downarrow\rangle\}$. Dans toute cette partie, nous négligerons le mélange de bande, et nous supposerons que les états de trous sont purement lourds; cette base de quatre états permet ainsi de décrire pleinement le système.

L'interaction avec le champ magnétique de ces états est gouvernée par l'hamiltonien de Zeeman :

$$H_Z = +\frac{1}{2}\mu_B \vec{B} \hat{g}_h \cdot \vec{\sigma}_h + \frac{1}{2}\mu_B g_e \vec{B} \vec{\sigma}_e \quad (3.12)$$

où $\vec{\sigma}_e$ et $\vec{\sigma}_h$ représentent les matrices de Pauli pour le spin du trion et du trou. Ici, on suppose que le champ magnétique est orienté suivant x , à 90° de l'axe z . Cet hamiltonien peut se lire dans la base associée à l'axe de quantification x , comme :

$$H_Z = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}g_e\mu_B B_a^x & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}g_e\mu_B B_a^x & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2}g_h^\perp \mu_B B_a^x & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{1}{2}g_h^\perp \mu_B B_a^x \end{pmatrix}_{(x)} \quad (3.13)$$

Par souci de commodité, on préfère rester dans la base des états propres des composantes z de spin (qui sont les états photo-excités). Le hamiltonien Zeeman s'écrit alors :

$$H_Z = \begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{2}g_e\mu_B B_a^x & 0 & 0 \\ \frac{1}{2}g_e\mu_B B_a^x & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}g_h^\perp \mu_B B_a^x \\ 0 & 0 & \frac{1}{2}g_h^\perp \mu_B B_a^x & 0 \end{pmatrix}_{(z)} \quad (3.14)$$

Comme souvent dans ce type d'étude, on utilise pour le trou un pseudo-spin $1/2$, ce qui ne change rien à la physique étudiée. Les états propres de cet Hamiltonien

s'écrivent :

$$|T\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\pm |T \uparrow\rangle + |T \downarrow\rangle \right) \quad (3.15)$$

$$|h\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\pm |h \uparrow\rangle + |h \downarrow\rangle \right) \quad (3.16)$$

Il s'agit des états propres des composantes de spin. Nous nous concentrons ici sur l'excitation du système produite par l'impulsion pompe. Celle ci sera décrite dans le référentiel tournant à la pulsation ω de la transition, et en négligeant les termes $\sim 2\omega$ (*Rotating Wave Approximation*). L'hamiltonien d'interaction avec l'impulsion laser pompe résonante avec l'énergie de la transition $\hbar\omega$, et de polarisation $\sigma-$ s'écrit alors :

$$H_L = \frac{d.E_p}{2} p(t) \exp(i\psi_p) |h \uparrow\rangle \langle T \uparrow| + H.c. \quad (3.17)$$

où d est le dipôle de la transition (qu'on suppose égal pour les deux transitions $\sigma+$ et $\sigma-$), E_p l'amplitude du champ électrique⁶ de la pompe vue par la BQ et ψ_p sa phase. Enfin $p(t)$ est l'enveloppe temporelle de l'impulsion. Lorsqu'on intègre l'évolution induite par cet hamiltonien sur la durée de l'impulsion, on s'aperçoit que la pompe a pour effet de faire subir à la matrice densité la transformation unitaire : $\rho(t = 0^+) = W_p(\theta)\rho(t = 0^-)W_p^\dagger(\theta)$, où $W_p(\theta)$ est l'opérateur :

$$W_p(\theta) = \begin{pmatrix} \cos(\frac{\theta}{2}) & 0 & -i \sin(\frac{\theta}{2})e^{-i\psi_P} & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ -i \sin(\frac{\theta}{2})e^{i\psi_P} & 0 & \cos(\frac{\theta}{2}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

et où $\theta = \int \frac{dE_{pp}(t)}{\hbar} dt$, est l'angle de Rabi de l'impulsion (de durée totale $\tau \approx 2$ ps très faible devant les autres temps d'évolution du système). Si on considère qu'à $t = 0^-$, juste avant l'arrivée de la pompe, la BQ contient un trou qui est à l'équilibre thermodynamique alors cette transformation donne :

$$\rho(t = 0^+) = W_p(\theta) \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} W_p^\dagger(\theta) = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2}) & 0 & \frac{-i}{2} \cos(\frac{\theta}{2}) \sin(\frac{\theta}{2})e^{-i\psi} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{i}{2} \cos(\frac{\theta}{2}) \sin(\frac{\theta}{2})e^{+i\psi} & 0 & \frac{1}{2} \cos^2(\frac{\theta}{2}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

On reconnaît ici une matrice familière en optique quantique, impliquant que l'intégralité de la population de l'état bas $|h \uparrow\rangle$ ($\langle h \uparrow | \rho | h \uparrow \rangle$) est transférée vers l'état

6. La connaissance du "vrai" champ vu par les BQ dans l'échantillon nécessite la prise en compte des indices de réfraction à chaque interface de l'échantillon. Cependant l'amplitude totale du signal a peu d'importance dans notre étude, et nous nous dispenserons de ce traitement.

haut $|T \uparrow\rangle$, pour une impulsion ayant un angle de Rabi $\theta = \pi$. A l'inverse, une impulsion 2π laisse les populations du système inchangées.

Cependant, on ne pourra pas retrouver ce résultat élégant sur notre expérience, du fait de la disparité du dipôle (et donc de l'angle de Rabi) des BQ observées. D'autre part, nous étudions un régime de pompage périodique, et donc la population à $t = 0^-$ ne sera pas à l'équilibre thermodynamique, ce qui influence la population créée à $t = 0^+$. Nous étudierons l'écart à cette initialisation idéale dans la section 3.3.3.

L'état ainsi photoexcité évolue de façon cohérente suivant l'hamiltonien de Zeeman. Nous allons ici nous intéresser à son évolution incohérente, qui limite le temps de cohérence T_2 du trou.

3.3.2 Dynamique et décohérence de Lindblad

L'évolution de la matrice densité est décrite par l'équation de Liouville suivante :

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[H_Z, \rho] + L_{rad}(\rho) + L_h(\rho) + L_e(\rho) \quad (3.20)$$

Le premier terme de cette équation contient l'évolution cohérente de la matrice densité, due à l'hamiltonien Zeeman. Les autres termes sont des dissipateurs de *Lindblad*, qui permettent de prendre en compte de façon exacte⁷ les processus de décohérence, et de leur attribuer des constantes de temps phénoménologiques. Le premier permet de prendre en compte la désexcitation radiative du système, et s'écrit :

$$L_{rad}(\rho) = \gamma_1(\sigma_-^\uparrow \rho \sigma_+^\uparrow - \frac{1}{2}[\sigma_+^\uparrow \sigma_-^\uparrow, \rho]_+ + \sigma_-^\downarrow \rho \sigma_+^\downarrow - \frac{1}{2}[\sigma_+^\downarrow \sigma_-^\downarrow, \rho]_+) \quad (3.21)$$

$$+ \frac{1}{2}\gamma_0(\sigma_0 \rho \sigma_0 - [\sigma_0 \sigma_0, \rho]_+) \quad (3.22)$$

Avec :

$$\sigma_+^\uparrow = (\sigma_-^\uparrow)^\dagger = |h \uparrow\rangle \langle T \uparrow|$$

$$\sigma_+^\downarrow = (\sigma_-^\downarrow)^\dagger = |h \downarrow\rangle \langle T \downarrow|$$

$$\sigma_0 = |T \uparrow\rangle \langle T \uparrow| + |T \downarrow\rangle \langle T \downarrow| - |h \uparrow\rangle \langle h \uparrow| - |h \downarrow\rangle \langle h \downarrow|$$

Dans cette équation, $\gamma_1 = \frac{1}{\tau_{rad}}$ représente le taux d'émission radiative de nos BQ, que nous fixons (grâce à de précédentes études [47]) à 700 ps. Le taux γ_0 , permet de prendre en compte les différentes sources de déphasage *pur* (interaction avec les phonons, effets de champs dus aux charges environnantes[96], ...). Cependant, ce terme ne nous intéresse pas dans cette étude, car la décohérence des termes interbandes⁸ (par exemple

7. Cet hamiltonien est démontré dans [85] en faisant la somme des processus de spin-flip avec un réservoir de spins Markovien. Cette hypothèse est raisonnable si l'on considère que le retour à l'équilibre du bain est très rapide devant l'évolution du système.

8. Dans la suite de cette étude, on pourra aussi négliger ces derniers car notre signal n'y est pas sensible [85].

$\langle h \downarrow | \rho | T \downarrow \rangle$) est dominée par les inhomogénéités de la fréquence de transition de l'ensemble de BQs, et parce que ce déphasage pur n'affecte pas les niveaux d'occupation des spins.

Vient ensuite le super-opérateur $L_h(\rho)$, qui prend en compte la dissipation affectant le trou. Il est important de noter que si le précédent opérateur est écrit dans la base des états propres optiques, celui ci s'écrit de préférence dans la base des états propres de l'hamiltonien Zeeman :

$$\begin{aligned} L_h(\rho) &= \kappa_+ (\sigma_-^h \rho \sigma_+^h - \frac{1}{2} [\sigma_+^h \sigma_-^h, \rho]_+) \\ &\quad + \kappa_- (\sigma_+^h \rho \sigma_-^h - \frac{1}{2} [\sigma_-^h \sigma_+^h, \rho]_+) \end{aligned}$$

avec :

$$\sigma_+^h = (\sigma_-^h)^\dagger = |h+\rangle \langle h-| \quad (3.23)$$

où κ_+ et κ_- sont les taux de cohérence longitudinale (ou de relaxation) pour les spin-flips respectivement *down* (du niveau Zeeman haut $|h+\rangle$ au niveau bas $|h-\rangle$), et *up*. Ces deux taux sont liés par un facteur de Boltzmann : $\kappa_- = \kappa_+ \exp(\frac{-\hbar\omega_h}{k_B T})$. On note que pour les caractéristiques de notre échantillon, le splitting Zeeman n'est pas systématiquement négligeable devant l'énergie thermique, car pour un champ de 1 T, on a $\exp(\frac{-\hbar\omega_h}{k_B T}) \approx 0.9$ à 2 K. La théorie prévoit aussi un terme supplémentaire prenant en compte le déphasage pur, qui peut être attribué à des processus d'interaction conservant l'énergie, ou des transitions virtuelles (spin-flips de deux noyaux, interaction avec deux phonons [47]...). Cependant, nous ne le prendrons pas en compte indépendamment ici, car notre étude ne permet pas, à ce stade, de distinguer les origines de la décohérence du spin du trou.

Enfin, un opérateur similaire s'applique avec les états du trion, mais avec des temps de cohérence de spin du trion qui sont longs par rapport à leur temps de vie radiatif ($T_2^T \sim 1 \mu s$ [107]), et qui ne l'affectent donc pas durant sa durée de vie. Cependant nous allons tout de même ajouter un opérateur de Lindblad :

$$\begin{aligned} L_T(\rho) &= \frac{1}{T_{2,e}^*} (\sigma_-^T \rho \sigma_+^T - \frac{1}{2} [\sigma_+^T \sigma_-^T, \rho]_+) \\ &\quad + \frac{1}{T_{2,e}^*} (\sigma_+^T \rho \sigma_-^T - \frac{1}{2} [\sigma_-^T \sigma_+^T, \rho]_+) \end{aligned}$$

avec un taux de déclin $\frac{1}{T_{2,e}^*}$, uniquement pour prendre en compte le déphasage des spins des trions dû aux inhomogénéités de g_e . Comme nous l'avons vu précédemment, l'inhomogénéité de g_h est encore plus forte, mais celle-ci va être traitée de façon différente dans notre simulation.

3.3.3 Simulation des résultats expérimentaux et estimation du T_2

Nous avons à présent énuméré le hamiltonien, l'excitation et les dissipations qui s'appliquent sur notre système, ainsi que ses inhomogénéités. Il convient de préciser que notre expérience ne nous permet pas a priori de distinguer les différents processus influant sur la décohérence du spin du trou. Ainsi, tous seront pris en compte via l'opérateur de Lindblad (3.23), et le temps de cohérence quasi homogène mesuré est défini comme :

$$T_2 = \frac{2}{\kappa_+ + \kappa_-} \approx \frac{1}{\kappa_{\pm}} \quad (3.24)$$

Cette définition du T_2 est assimilable au $T_2^0 = 2T_1$ dans le cas où le déphasage d'un spin unique est lent devant les processus menant à sa relaxation⁹.

Grâce aux études préliminaires, la plupart des autres paramètres servant à la modélisation du système sont fixés. On va ensuite se servir du logiciel *Mathematica*, afin de résoudre de façon formelle un certain nombre d'équations de notre problème, et de trouver les conditions stationnaires qui respectent le blocage de phase. Le déroulement des différentes étapes de la simulation est décrit ci-dessous.

Solutions de l'évolution libre Tout d'abord, on implémente l'équation de Liouville (3.20), ainsi que les opérateurs impliqués, sous forme matricielle. On calcule alors les solutions pour l'évolution des termes de la matrice densité associés au trion à partir de conditions initiales données. Ces solutions sont simples, et si on calcule les traces associées au spin : $S_Z^t = Tr[\sigma_z \cdot \rho_{sol}]$ et $S_Y^t = Tr[\sigma_y \cdot \rho_{sol}]$, on reconnaît aisément la dynamique de précession des spins, à la pulsation de Larmor, s'atténuant en T_2^{t*} et se recombinant en un temps $\tau_{rad} = \frac{1}{\gamma_1}$:

$$S_Z^t(t) = \left(S_Z^t(0) \cos\left(\frac{B_a^x g_e \mu_B}{\hbar} t\right) + S_Y^t(0) \sin\left(\frac{B_a^x g_e \mu_B}{\hbar} t\right) \right) e^{-t(\gamma_1 + \frac{1}{T_2^{t*}})} \quad (3.25)$$

$$S_Y^t(t) = \left(S_Y^t(0) \cos\left(\frac{B_a^x g_e \mu_B}{\hbar} t\right) - S_Z^t(0) \sin\left(\frac{B_a^x g_e \mu_B}{\hbar} t\right) \right) e^{-t(\gamma_1 + \frac{1}{T_2^{t*}})} \quad (3.26)$$

On a besoin de ces solutions dans un premier temps, car la recombinaison du trion détermine les populations du trou. On peut maintenant ré-injecter la solution de l'évolution du trion dans l'équation de Liouville, dont on résout le système d'équations correspondant au trou (les termes $\rho_{h\uparrow, h\uparrow}, \rho_{h\uparrow, h\downarrow}, \rho_{h\downarrow, h\uparrow}, \rho_{h\downarrow, h\downarrow}$ de la matrice densité). La solution obtenue est de forme nettement plus compliquée (et nous ne la donnerons pas ici).

9. Ce qui ne sera pas vérifié par la suite puisque le T_2 obtenu est très faible devant la limite $2T_1 \sim 200 \mu s$

Périodicité et blocage de phase On cherche ensuite les conditions initiales qui permettent à ces solutions de respecter la condition de blocage de phase à une impulsion : $\rho_{stat}(t = T_L) = \rho_{stat}(t = 0^-)$. Pour cela, on définit $\rho_{stat}(t = 0^-)$ comme inconnue, et puis on définit : $\rho_{stat}(t = 0^+) = W_p(\theta)\rho_{stat}(t = 0^-)W_p^\dagger(\theta)$, avec θ fixé, comme condition initiale des solutions de l'évolution libre, calculées précédemment. On peut alors calculer la matrice densité : $\rho(t = T_L)$. Et enfin, on résout formellement, grâce au logiciel, l'équation :

$$\rho(t = T_L) = \rho(t = 0^-) \quad (3.27)$$

On obtient ainsi les solutions, dont le spin à $t = 0^-$ dépend de B_a^x et de g_h . On voit donc que ce système permet bien de déterminer quels g_h sont modelockés, puisque ce sont bien ceux qui respectent la condition de blocage de phase, qui peuvent être initialisés le plus efficacement et prendre le plus d'importance dans la simulation. Pour la simulation avec deux impulsions de pompe, le principe est le même : calcul de $\rho(T_D^-)$, puis on applique la condition initiale $\rho(T_D^+) = W_p(\theta_2)\rho(T_D^-)W_p^\dagger(\theta_2)$, pour calculer l'évolution jusqu'à $t = T_L^-$.

Intégration sur $p(g_h)$ On remarque que le traitement fait jusqu'ici peut s'appliquer à une BQ unique (mis à part le choix du temps T_2^{t*} , qui prend en compte le déphasage de l'ensemble des trions). Mais maintenant que le blocage de phase nous a permis d'obtenir l'amplitude du spin S_Z^h pour chaque g_h , on peut intégrer ces conditions initiales, et l'évolution qui leur est associée, pour chaque g_h de notre distribution, connue précisément grâce à l'étude de la partie précédente. C'est la partie la plus longue de la simulation (4h de calcul), car il faut sommer sur toute la plage temporelle $t = [0; T_L]$, 1000 à 5000 solutions, afin d'obtenir un résultat réaliste.

Dépendance de l'initialisation avec la puissance L'angle de Rabi est le dernier paramètre qui nous manque pour bien reproduire nos expériences et déterminer T_2 . Comme mentionné précédemment, l'initialisation de notre système par la pompe ne suit pas exactement l'évolution prédite par les équations de Bloch. En effet, si l'équation (3.19) décrit correctement l'initialisation d'une BQ unique, pour une impulsion unique, elle ignore deux caractéristiques majeures de notre expérience. Tout d'abord, le système étudié est un ensemble de BQ ($10^4 - 10^5$), et même pour une énergie donnée, la dispersion du moment dipolaire des BQ fait que les BQ ne subissent pas le même angle de Rabi θ . Cet effet est de plus renforcé par le profil spatial en puissance de la tache laser pompe. On va donc supposer une dispersion gaussienne de l'angle de Rabi vu par les BQ participant au signal. De plus, comme expliqué précédemment, nous étudions un régime périodique, et l'état à $t = 0^-$, juste avant l'arrivée de l'impulsion suivante, influe sur la participation d'une BQ au signal PCD. Ainsi, pour avoir l'évolution réelle de l'initialisation du spin du trou avec la puissance, on doit se servir de notre simulation, et intégrer pour chaque g_h sur une distribution $W(\theta)$ de l'aire de Rabi.

Cette étape, très consommatrice de temps de calcul, est réalisée pour un délai unique $t < 0$, pour lequel on observe l'amplitude du signal simulé ($\propto (\rho_h \uparrow - \rho_h \downarrow)$) associé au trou. La figure 3.16 montre l'évolution de l'amplitude du signal expérimental de PCD à un délai négatif, en fonction de $\sqrt{P_{pompe}} \propto \theta$. La courbe rouge présente la dépendance obtenue par les simulations, dont l'abscisse est renormalisée afin d'approcher au mieux les résultats expérimentaux.

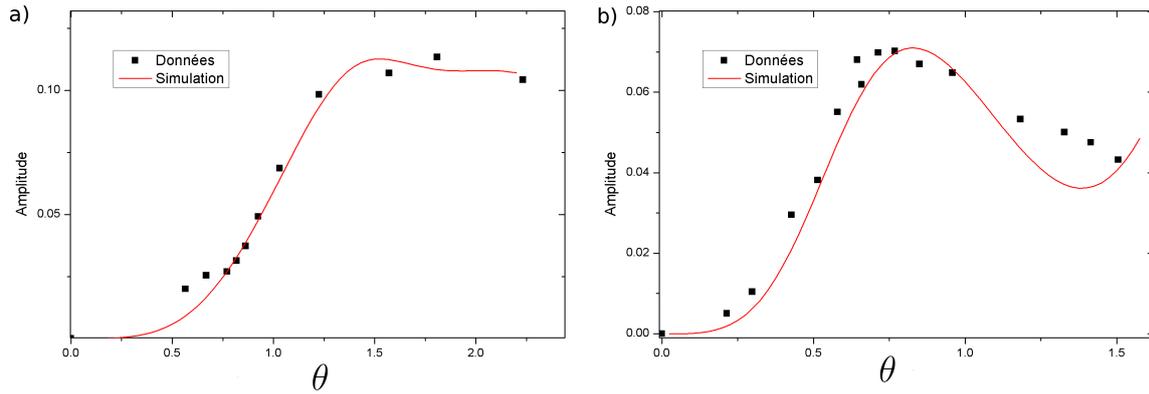


FIGURE 3.16 - Évolution de l'amplitude du signal associé au trou ($t < 0$) en fonction de θ , où $\theta \propto E \propto \sqrt{P_P}$ est l'angle de Rabi de l'impulsion pompe (en unité de π). Les résultats expérimentaux sont comparés à l'évolution prédite par les simulations. La courbe a) représente la situation avec une impulsion pompe. La courbe simulée a pour paramètre une dispersion gaussienne de θ de largeur à mi-hauteur $\frac{\Delta\theta}{\theta} = 40\%$. La courbe b) représente la situation avec une impulsion pompe double (les deux impulsions ayant la même énergie). La dispersion permettant d'approcher au plus près l'expérience est maintenant $\frac{\Delta\theta}{\theta} = 55\%$.

Les simulations permettant d'approcher au mieux l'expérience prennent en compte des distributions gaussiennes de θ telles que $\frac{\Delta\theta}{\theta} = 40\%$ et $\frac{\Delta\theta}{\theta} = 55\%$, pour une et deux pompes respectivement. La différence entre ces deux largeurs peut s'expliquer par une focalisation du laser sur l'échantillon différente, ainsi qu'une superposition imparfaite des taches de la 1ère et de la 2ème impulsion. Cependant, si l'on suppose cette distribution décorrélée de celle du g_h , alors elle doit avoir un impact limité sur le signal de PCD. Par contre, la valeur centrale θ influe beaucoup sur le résultat des simulations. Ces courbes vont nous permettent d'estimer l'angle θ à utiliser dans la simulation, grâce à la détermination de la puissance du faisceau pompe lors de l'expérience. L'ajustement (présenté en rouge sur la figure 3.16), permet de déterminer que la puissance d'excitation correspond à $\theta = 0,4\pi$ pour la situation à une impulsion de pompe, et à $\theta = 0,3\pi$ pour la situation à deux impulsions pompes.

Tracé des solutions et estimation du T_2 En s'appuyant sur le signal décrit dans le chapitre précédent, on trace alors le signal de PCD, en traçant : $PCD_{simu}(t) = \int Tr[\rho(t)[\sigma_Z^T - \sigma_Z^h]p(g_h)dg_h$. Le résultat est montré sur la figure 3.17. On peut y voir que la simulation reproduit bien la précession du spin du trou, leur désynchronisation,

et également leur re-synchronisation avant l'arrivée de l'impulsion pompe suivante. C'est grâce à cette resynchronisation qu'on peut estimer le T_2 du spin du trou (cf figure 3.17). En effet, l'amplitude de la re-synchronisation dépend du T_2 , et la valeur qui permet de reproduire au mieux les expériences est $T_2 = 800$ ns.

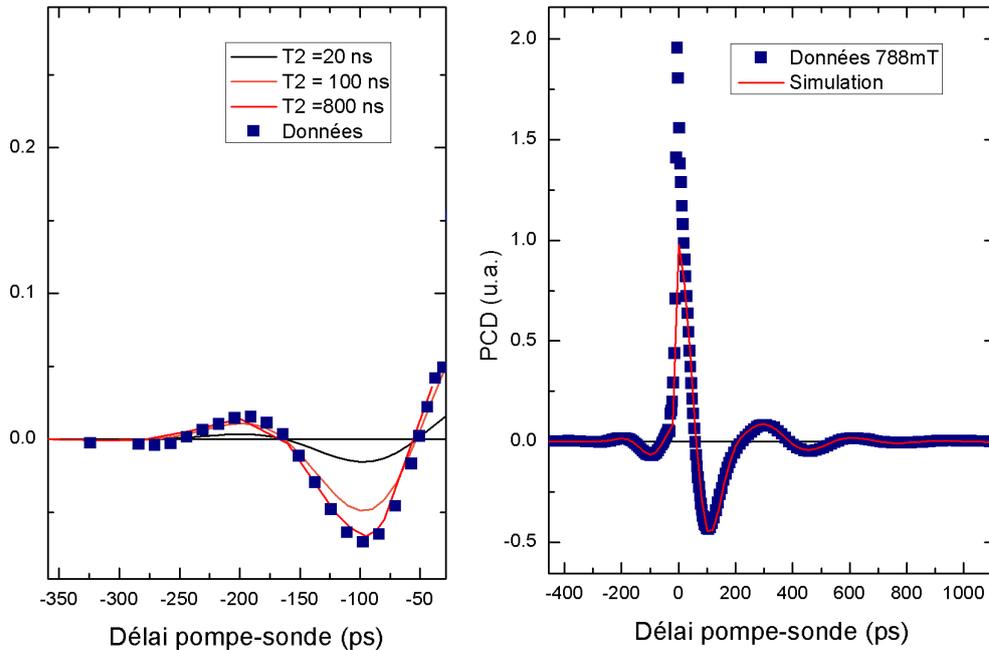


FIGURE 3.17 – Signal de PCD obtenu pour un champ appliqué de $B_a^x = 788$ mT, lors de l'excitation par une impulsion pompe, aux délais négatifs (réplique). L'évolution du signal est très bien reproduite par les simulations, lorsqu'on fixe : $T_2 = 800$ ns.

La simulation nous permet aussi de bien reproduire les résultats à deux impulsions pompes. On peut y voir effectivement toutes les resynchronisations des modes, aux délais $t = n.T_D$. Ce sont les répliques à $t = 0^-$ et $t = -T_D$ qui permettent d'estimer le T_2 avec le plus de précision. Encore une fois, la valeur $T_2 = 800$ ns présente une bonne correspondance avec les données expérimentales (cf. figure 3.18).

Il convient de préciser que les valeurs de $T_2 > 700$ ns reproduisent elles aussi correctement l'amplitude de la resynchronisation. En effet, comme $T_2 \gg T_L$, l'amortissement est faible sur la plage temporelle observée. Il vaut donc mieux considérer cette dernière valeur comme une borne inférieure du T_2 . Cependant celle-ci concorde bien avec les résultats obtenus par une équipe concurrente [130, 129].

Les simulations présentées dans cette section reproduisent très bien les données expérimentales, sur une large gamme de champ (comme illustré par la figure 3.19), ce qui nous permet d'estimer le T_2 du trou dans notre échantillon. Nous avons fait l'effort d'étendre ces simulations afin de reproduire les résultats obtenus par des expériences

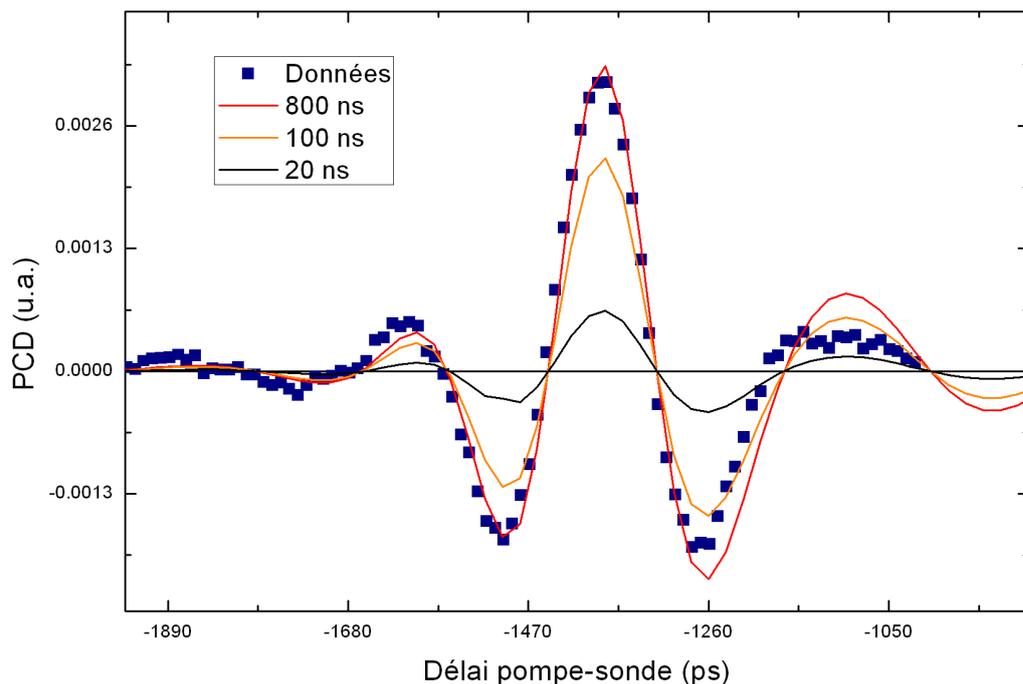


FIGURE 3.18 – Signal de PCD obtenu pour un champ appliqué de $B_a^x = 731 \text{ mT}$, lors de l'excitation par deux impulsions pompe, aux délais négatifs (réplique). L'évolution du signal est très bien reproduite par les simulations, lorsqu'on fixe : $T_2 = 800 \text{ ns}$.

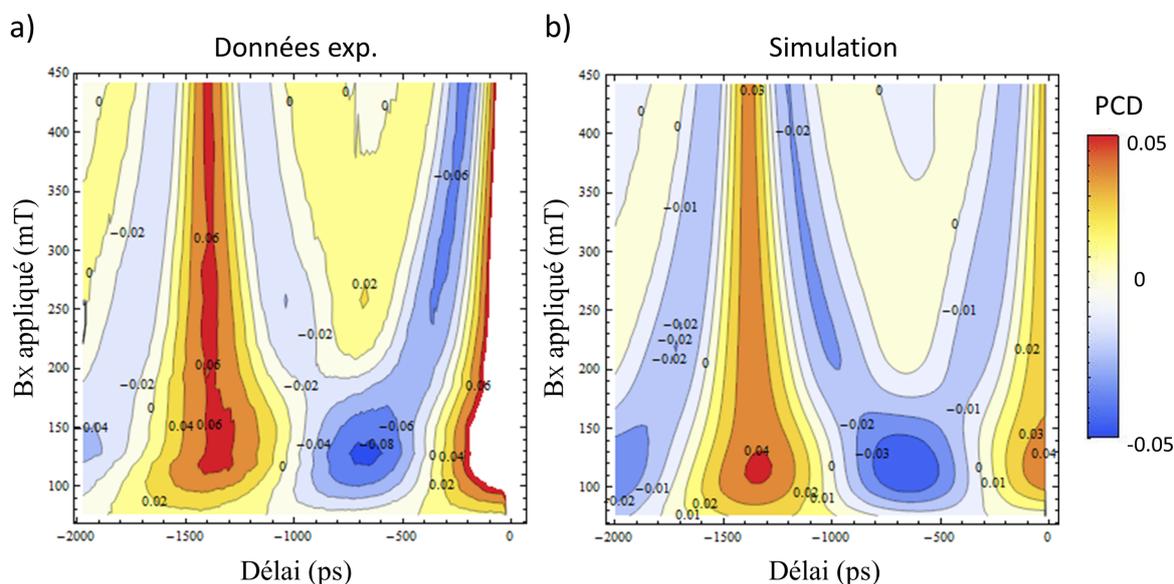


FIGURE 3.19 – Figure en code couleur (rouge étant positif, bleu négatif), représentant le signal PCD en fonction du délai, pour différents champs. On peut voir que les expériences (a) sont très bien reproduites par les simulations (b), sur une large gamme de champs magnétiques appliqués.

concurrentes, qui utilisent un dispositif similaire, mais dont les échantillons présentent des paramètres bien différents. Les simulations, présentés dans l'annexe A, reproduisent très bien les expériences utilisant un *pulse-picker* [130], ou une technique d'écho de spin [129], ou encore le déphasage de la précession du trou à faible champ [58]. Cette cohérence avec les autres expériences, renforce notre confiance dans l'estimation du T_2 donnée, et permet d'y apporter des informations complémentaires.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons détaillé toutes les étapes menant à la détermination du temps de cohérence T_2 du spin du trou localisé dans des BQ d'InAs/GaAs dopées p . Après avoir présenté les techniques antérieures au blocage de phase, nous avons expliqué comment celui-ci permet d'obtenir un signal de PCD à un temps *long*, malgré le déphasage inhomogène des spins. Nous nous sommes ensuite concentrés sur la quantification des temps de déphasage et des inhomogénéités importantes de l'ensemble de BQ sondé, à l'aide d'un modèle phénoménologique. Nous avons ensuite présenté des éléments de théorie qui nous ont permis, avec les paramètres obtenus dans nos études préliminaires, de reproduire nos résultats expérimentaux par la simulation, sur une large gamme de champs, et d'estimer le temps de cohérence quasi homogène $T_2 \gtrsim 800$ ns à 2 K pour $B_a^x \in [0, 4; 1, 2T]$, pour le du spin du trou. Enfin, en complément, nous avons utilisé le modèle établi afin de reproduire les résultats obtenus dans les équipes concurrentes.

Si les études concurrentes ont mesuré un T_2 du trou similaire (700 ns [129]), il convient de comparer celui-ci au aux autres temps de déclin du spin dans les BQ. Tout d'abord, le T_2 du spin électronique, estimé par l'expérience fondatrice du Bayer [53] puis par Yamamoto et al. [107], mesurant un temps de cohérence $\sim 3 \mu s$ (à 2 K et $B_a^s = 4$ T). Le temps de cohérence du spin du trou est donc plus faible que celui de l'électron, contrairement à ce qui était espéré initialement. Ce résultat semble démontrer que ces temps de cohérence, ne sont pas limités par l'interaction hyperfine. De plus, les temps de relaxation T_1 du spin électronique et du spin du trou sont du même ordre de grandeur dans la gamme de champ $[2; 5 T]$: $T_1^e \gtrsim 300 \mu s$ [71] et $T_1^h \sim 200 \mu s$ [57]. Dans ces deux études, ces temps de relaxation très longs sont attribués à l'interaction spin-orbite assistée par le couplage aux phonons. On remarque que les temps T_2 mesurés sont très courts par rapport à la limite théorique $2T_1$. Cette observation indiquerait que les temps de cohérence sont trop courts pour être (eux aussi) limités par le couplage spin-orbite. Cependant cette affirmation est modérée par les mesures du T_1^h réalisées dans notre groupe [46] dans des conditions expérimentales plus proches (même échantillon et même gamme de champ), qui permettent d'estimer $T_1^h \approx 3 \mu s$ à 1 T. En considérant cette estimation, la valeur du T_2 donnée est bien plus proche de la limite $2T_1$, et le T_2 pourrait être limité par le même processus que le T_1 , à savoir le

couplage spin-orbite assisté par les processus à deux phonons.

À la suite de nos études, l'évolution du T_2 avec la température de l'échantillon a été étudiée dans la référence [129], et montre que celui-ci présente une chute brutale dès que la température dépasse 7 K. Cette évolution rapide permet aux auteurs de discriminer les excitations vers des orbitales supérieures, et les phonons anharmoniques, comme principaux responsables de la décohérence. Les auteurs suggèrent donc l'influence d'un autre mécanisme, incluant les phonons acoustiques. D'autres mécanismes pourraient limiter le temps de cohérence, comme par exemple l'interaction avec des charges fluctuantes dans l'environnement de la BQ [99], ou l'interaction quadrupolaire [55]. La compréhension de ces mécanismes pourrait être améliorée grâce au développement rapide des expériences de *spin-noise* [55, 26, 109, 27], qui permettent d'étudier simultanément les nombreuses échelles temporelles en jeu. Cette compréhension pourrait en retour servir dans les divers protocoles de *découplage dynamique*, comme l'écho de spin [129, 107], ou Carr-Purcell-Meiboom-Gill (CPMG) [128].

A contrario, d'autres approches reposent sur le contrôle de l'environnement (comme par exemple des spins nucléaires), pour manipuler le spin et rallonger son temps de déclin [56]. C'est dans cette optique que nous nous sommes intéressés à la mise en évidence et l'analyse de la polarisation nucléaire dynamique dans le chapitre suivant.

Chapitre 4

Effets de polarisation nucléaire dynamique en champ transverse

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que les fluctuations du champ magnétique nucléaire agissant sur les spins des porteurs de charge provoquent un déphasage de la précession de leurs spins. Or les BQ sont aussi des systèmes privilégiés pour la manipulation, et le contrôle de la polarisation nucléaire. En effet, si l'interaction hyperfine couple le champ *Overhauser* produit par les spins nucléaires au spin électronique, le spin du porteur de charge va en retour produire un champ *Knight* dont les composantes transverses sont capables de polariser les noyaux. Ce processus, appelé *polarisation nucléaire dynamique* (PND), va être particulièrement efficace dans les BQ, à cause du confinement spatial de la fonction d'onde électronique et de l'inhibition de la diffusion de spin en dehors de la BQ. On peut ainsi obtenir des taux de polarisation nucléaire très élevés ($\sim 80\%$ [89]), dont l'influence sur l'électron est comparable à un champ magnétique de plusieurs Teslas. La manipulation de la polarisation nucléaire peut alors devenir un outil précieux pour la manipulation d'un Qubit de spin électronique dans les BQ [56]. Notamment, la polarisation de 100 % des noyaux du système permettrait d'éviter le déphasage dû aux fluctuations des spins nucléaires. Cependant, la PND, est aussi influencée par l'interaction quadrupolaire, qui est particulièrement importante dans les BQ auto-assemblées d'InAs/GaAs, et dont les effets sont encore mal caractérisés.

Dans la littérature, la plupart des expériences de PND sont réalisées en champ longitudinal (configuration Faraday). Mais dans les expériences de Mode-Locking présentées au chapitre précédent, certaines conditions d'excitation permettent d'observer des effets associés à une PND, en dépit du champ magnétique transverse à l'axe optique (configuration *Voigt*). Bien qu'une incertitude subsiste quant à l'interprétation de ces résultats, nous les présenterons dans ce chapitre avec des pistes de compréhension.

Nous présenterons d'abord un panorama des nombreuses interactions agissant

sur les spins nucléaires et électroniques dans les BQ, et nous soulignerons les rôles primordiaux des interactions hyperfine et quadrupolaire, en présentant des expériences montrant leur importance dans les BQ. Puis nous étudierons deux expériences de PND de la littérature, mettant en œuvre une PND en champ transverse dans les BQ. Enfin nous présenterons les conditions expérimentales et les résultats originaux obtenus dans notre équipe, avec des pistes d'explication.

4.1 Dynamique de polarisation et interactions nucléaires dans les BQ

De nombreuses interactions jouent un rôle dans la PND, la plus importante étant l'interaction hyperfine. Ces interactions couvrent des domaines énergétiques et temporels très larges, qui sont cependant difficiles à distinguer dans les expériences. Nous jugeons donc utile de présenter ces interactions et les constantes associées, ainsi que les observations qui leur sont associées dans la littérature. Les caractéristiques et déductions de ces expériences seront toutes utiles pour l'interprétation de nos observations.

Nous présenterons d'abord de façon détaillée les mécanismes et les constantes de temps associés à l'interaction hyperfine, pour l'électron et pour le trou. Ces mécanismes vont permettre le transfert de la polarisation d'un porteur excité vers les noyaux de la BQ, que nous présenterons grâce à l'expérience réalisée par O. Krebs et al. [69]. Nous étudierons ensuite l'influence de l'interaction quadrupolaire, particulièrement importante dans les BQ d'InAs/GaAs, du fait des valeurs importantes des spins des noyaux d'indium et d'arsenic, et des contraintes de la structure auto-assemblée. Cette importance sera mise en valeur grâce aux expériences très probantes réalisées par Maletinsky et al. [88]. Enfin nous présenterons le rôle limitant joué par l'interaction dipôle-dipôle.

4.1.1 Interaction hyperfine

L'interaction hyperfine est l'interaction entre le spin d'un noyau et le spin d'un porteur de charge. Comme mentionné précédemment, cette interaction est particulièrement importante pour les BQ, dans lesquelles la fonction d'onde électronique est confinée sur un faible nombre ($\sim 10^5$) de noyaux. Nous avons vu dans la section 1.4 que les fluctuations de la polarisation nucléaire d'une BQ à l'autre induisent un déphasage de la précession du spin électronique. De plus, la forte localisation de la fonction d'onde va rendre efficace l'échange de moment angulaire entre les noyaux et les électrons, qui sont injectés de façon répétée dans la BQ, avec une polarisation contrôlée (grâce aux règles de sélection optique). La polarisation optique va ainsi induire la construction d'un champ nucléaire, qui va à son tour influencer sur la dynamique électronique.

Dans cette sous-partie, nous allons présenter les Hamiltoniens associés à l'interaction hyperfine pour un électron de conduction, et voir comment il permet d'induire une forte polarisation nucléaire (en champ longitudinal), avant de traiter le cas du trou. Les mécanismes introduits dans cette partie permettent de faire le lien entre nos conditions d'excitation et la PND créée dans la partie 4.3.

Hamiltonien hyperfin de l'électron

Comme on l'a vu dans la section 1.4, on peut prendre en compte l'interaction d'un électron photo-excité avec l'ensemble des noyaux de la BQ, en sommant le Hamiltonien associé au terme de *contact* de l'interaction hyperfine sur tous les noyaux j de la BQ :

$$\hat{H}_{hf}^c = \eta_0 \sum_j A^j |\phi_e(\vec{r}_j)|^2 \hat{S} \cdot \hat{I}^j \quad (4.1)$$

où η_0 est le volume de la cellule unité de la fonction d'onde atomique, et où l'on a introduit la *constante hyperfine* : $A \equiv \frac{16\pi}{3I} \frac{\mu_0 \mu_B \mu_I}{\eta_0} |u_{1(2)}(0)|^2$. Dans les semi-conducteurs $III-V$, les valeurs de A sont proches de $50 \mu\text{ev}$ (cf tableau 4.1). Étant donné le grand nombre de noyaux impliqués, on peut considérer que l'électron interagit avec un spin nucléaire moyen $\langle \hat{I}^j \rangle$, et que cette interaction est équivalente à celle avec un *champ nucléaire* \vec{B}_n définit tel que : $g_e \mu_B \vec{B}_n \hat{S} \equiv \hat{H}_{hf}$. On a donc :

$$\vec{B}_n = \frac{\eta_0 \sum_j A^j |\phi_e(\vec{r}_j)|^2 \langle \hat{I}^j \rangle}{g_e \mu_B} \quad (4.2)$$

Ce champ nucléaire s'exerçant sur l'électron, aussi appelé champ *Overhauser*, peut (sous les bonnes conditions d'excitation) atteindre plusieurs Tesla [119], et ainsi créer des écarts d'énergie supérieurs à $100 \mu\text{eV}$. L'interaction étant réciproque, on peut aussi considérer que le spin électronique exerce un champ magnétique sur les noyaux. Ce champ *Knight* s'exerçant sur le noyau j est défini tel que :

$$\vec{B}_K^j = f_e \frac{\eta_0 A^j}{g_N \mu_N} |\phi_e(\vec{r}_j)|^2 \langle \hat{S} \rangle \quad (4.3)$$

où le paramètre f_e est la fraction du temps pendant laquelle l'électron est dans la BQ. On voit donc, si on excite la BQ avec un spin moyen non-nul $\langle \hat{S} \rangle$, que plus son taux d'occupation va être élevé et plus le champ Knight produit par l'électron va être fort et polariser les noyaux. Dans les conditions expérimentales usuelles, le champ Knight est de l'ordre de la dizaine de mT [73]¹.

On remarque que l'intensité de l'interaction est modulée par l'amplitude de la fonction enveloppe sur le noyau j , via $|\phi_e(\vec{r}_j)|^2$. Les noyaux sur le bord de la BQ vont

1. La différence d'un ordre de grandeur entre les champs Knight et Overhauser s'explique par le rapport $\frac{g_e \mu_B}{g_N \mu_N} \sim 1000$ qui contrebalance la sommation sur 10^{4-5} spins dans le cas de \vec{B}_n .

Élément	Spin	$A^j(\mu eV)$	$M^j(\mu eV)$	B_Q (mT)
Ga	3/2	38	3,0	385
In	9/2	56	-4,0	110
As	3/2	46	-4,4	150

FIGURE 4.1 – Les valeurs de la constante hyperfine de l'électron A^j sont tirées de la référence [98]. Les valeurs de celle du trou M^j (dont l'hamiltonien hyperfin est donné dans la section 1.4.2), ont été estimées récemment dans [23]. Les valeurs de B_Q dépendent fortement de la géométrie des contraintes de la BQ. Les valeurs citées ici proviennent des estimations faites dans les références [68, 35, 125].

donc voir un champ Knight plus faible que ceux situés au centre, et il est donc impossible d'écranter le champ Knight uniformément par l'application d'un champ externe [73]. L'inhomogénéité de la fonction enveloppe va aussi créer des gradients de champ Knight, qui peuvent inhiber les mécanismes de diffusion du spin liés à leur interaction dipolaire [83]².

Enfin, on notera que suivant ces équations, le champ Knight produit par le trou sera un ordre de grandeur plus faible (cf section 1.4.1), et son effet sur la polarisation nucléaire sera un ordre de grandeur plus faible que celui produit par l'électron. Aussi, l'influence du trou sur la PND sera le plus souvent négligée devant celle de l'électron, qui peut être utilisée afin de produire des polarisations nucléaires importantes.

Dynamique de polarisation nucléaire en champ longitudinal

Le couplage entre les spins nucléaires et électroniques exercé via l'interaction hyperfine va autoriser un échange de leurs moments angulaires. En effet, le Hamiltonien (4.1) va pouvoir se réécrire (en utilisant les notations usuelles pour les spin $\hat{S}_\pm = \hat{S}_x \pm i\hat{S}_y$) :

$$H_{hf} = \eta_0 \sum_j A^j |\phi_e(\vec{r}_j)|^2 \left[\hat{S}_z \hat{I}_z^j + \frac{\hat{S}_+ \hat{I}_-^j + \hat{S}_- \hat{I}_+^j}{2} \right] \quad (4.4)$$

Le premier terme entre crochet n'induit pas de changement du spin, mais seulement un écart d'énergie de type Zeeman. Le deuxième terme en revanche, autorise un retournement réciproque d'un spin nucléaire et du spin électronique (*flip-flop*). Cet échange se réalise de façon à conserver le spin total du système. Ainsi, l'injection répétée d'un électron avec une polarisation supérieure à la polarisation prévue par l'équilibre thermique du système $\langle \hat{S}_e \rangle_0$, va permettre le transfert de moment angulaire de spin vers les noyaux, lors de la relaxation du spin électronique. A cette fin, les trions X^+ vont être particulièrement intéressants, car ils permettent l'injection répétée d'un spin élec-

2. Cependant, il vont rendre possible de nouveaux mécanismes de diffusion du spin utilisant des processus à deux phonons [47].

tronique, dont l'orientation est contrôlée par les règles de sélection optique.

Ce mécanisme de polarisation nucléaire a été mis en œuvre dans de nombreuses expériences afin de créer une polarisation nucléaire importante [119, 89], et nous allons ici présenter en exemple l'expérience réalisée par Eble et al. en 2005 [38], et la modélisation associée [37].

On notera que cette expérience a été réalisée avec l'application d'un champ longitudinal B_z , et avec une excitation continue hors résonance³. Ce dernier point est particulièrement important car il implique des temps de corrélation du spin électronique courts ($\tau_c^e \sim 50$ ps), à cause des captures/échappements rapides d'électrons dans la BQ. Ce temps de corrélation court est indispensable à l'efficacité de l'échange flip-flop. En effet, si le Hamiltonien (4.4) implique la conservation du spin, il ne prévoit pas la conservation de l'énergie. Or le retournement du spin électronique est bien plus énergétique que le retournement du spin nucléaire, car⁴ $\frac{\hbar\omega_Z^e}{\hbar\omega_Z^n} \sim 10^3$. Comme on peut le voir sur la figure 4.2.a, les états ($|\uparrow^e\rangle \otimes |I_z\rangle$) et ($|\downarrow^e\rangle \otimes |I_z + 1\rangle$) vont avoir des énergies bien distinctes (séparées de $\approx \hbar\omega_Z^e$), mais le faible temps de corrélation du spin électronique va leur conférer une largeur importante $\sim \hbar/\tau_c^e$. Cette largeur, comparable à l'écart énergétique, va augmenter la probabilité de la transition entre les deux niveaux.

En faisant l'approximation d'une équi-répartition de la fonction d'onde sur les N noyaux de la BQ (de volume $\eta_0 N/2$), on peut montrer [37] que les fluctuations temporelles du terme flip-flop (à l'échelle de τ_c^e), vont induire une relaxation de la polarisation nucléaire en un temps T_{1e} :

$$T_{1e} = \left(\frac{N\hbar}{\tilde{A}}\right)^2 \frac{1 + (\omega^e \tau_c^e)^2}{2f_e \tau_c^e} \quad (4.5)$$

où $\hbar\omega^e = g_e \mu_B (B_z + B_n)$ et où $\tilde{A} \sim 50 \mu\text{eV}$ est la constante hyperfine moyenne des noyaux de la BQ. On peut alors établir une équation différentielle simple pour l'évolution de la polarisation nucléaire moyenne $\langle \tilde{I}_z \rangle$:

$$\frac{d\langle \tilde{I}_z \rangle}{dt} = -\frac{1}{T_{1e}} \left(\langle \tilde{I}_z \rangle - \tilde{Q}(\langle \tilde{S}_z^e \rangle - \langle \tilde{S}_z^e \rangle_0) \right) - \frac{\langle \tilde{I}_z \rangle}{T_d} \quad (4.6)$$

où le premier terme représente la PND induite par l'écart du spin électronique

3. La BQ est dans ce cas intégrée à une structure Schottky, qui couple le niveau électronique de la BQ à la mer de Fermi du GaAs dopé.

4. On notera au passage que ce faible écart Zeeman pour les noyaux explique la faible polarisation nucléaire produite uniquement par le champ magnétique (même de plusieurs Tesla) à $T = 2$ K. En revanche, le pompage optique des noyaux va permettre d'atteindre des taux de polarisation nucléaires équivalents à des températures de spin de 10^{-4} K (bien que le concept de température de spin développé par Abragam [1] ne soit pas valide dans les BQ, comme nous allons le voir par la suite).

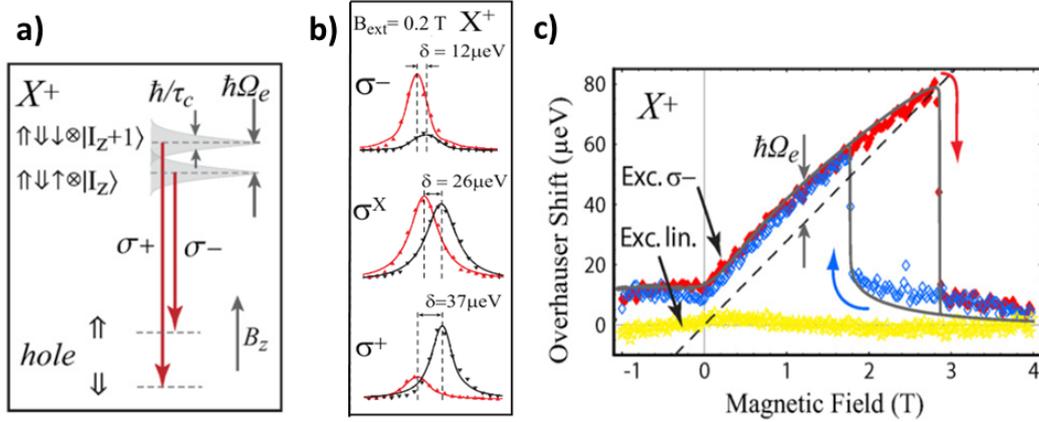


FIGURE 4.2 – a) Diagramme des niveaux d'énergies couplés par un événement flip-flop. Leur recouvrement énergétique est rendu possible par leur largeur (\hbar/τ_c) non nulle, et renforcé lorsque l'écart Zeeman électronique $\hbar\Omega_e$ est faible. b) Courbe de photoluminescence de BQ dopées p. On observe les écarts Zeeman du trion X^+ , affecté de façon asymétrique par le shift Overhauser dû à la polarisation nucléaire. Celle-ci est plus importante quand elle s'oppose au champ appliqué (excitation σ^-). c) Bistabilité du champ nucléaire (et donc du shift Overhauser) créé anti-parallèle au champ appliqué, lors d'une rampe de champ. Figures compilées des références [37, 69]

à sa polarisation d'équilibre $\langle \tilde{S}_z^e \rangle_0$ ⁵, modulé par le facteur numérique $\tilde{Q} \sim 15$ dans l'InGaAs. Le terme de déclin en $\frac{1}{T_d} = \frac{1}{T_d^\infty} + \frac{1}{T_d'(1+(\frac{B_z}{B_Q}))}$ est ajouté afin de prendre en compte la relaxation de la polarisation due aux interactions dipôle-dipôle et quadrupolaire. L'expression (4.6) en régime stationnaire ($\frac{d\langle \tilde{I}_z \rangle}{dt} = 0$), reproduit très bien les résultats expérimentaux (cf. figure 4.2.c), et leur ajustement permet de quantifier le champ $B_Q \approx 400 \text{ mT}$. Il s'agit d'une première indication du rôle important de l'interaction quadrupolaire.

La dépendance en ω^e de T_{1e} confère à l'équation (4.6) un caractère non-linéaire bien visible dans les expériences de Eble et al. [38] et Krebs et al. [69]. Cette non-linéarité se manifeste tout d'abord par l'asymétrie du déplacement Overhauser due à la polarisation nucléaire (cf figure 4.2.b, le déplacement Overhauser est plus important pour l'excitation σ^-); les équations favorisant fortement la construction d'un champ nucléaire anti-parallèle au champ appliqué B_z ⁶.

De plus, elle va induire une importante bi-stabilité du champ nucléaire, qui va s'opposer au champ appliqué jusqu'à un champ critique $B_c \approx 3 \text{ T}$. Au delà de ce champ,

5. On note que la polarisation à l'équilibre thermique : $\langle \tilde{S}_z^e \rangle_0 = \frac{1}{2} \tanh(\frac{\hbar\omega^e}{k_B T}) \approx 0$ dans la gamme de champ étudié.

6. On peut attribuer cette asymétrie à une diminution de l'écart Zeeman total de l'électron $g_e\mu_B(\vec{B}_z + \vec{B}_n)$, qui va augmenter le recouvrement des raies $|\uparrow^e\rangle \otimes |I_z\rangle$ et $|\downarrow^e\rangle \otimes |I_z + 1\rangle$, et ainsi favoriser l'établissement d'une polarisation nucléaire plus importante (cf figure 4.2.a).

la dépolarisation (due au terme T_d de l'équation 4.6), dépasse le pompage optique et le champ chute brutalement ; il faut alors réduire le champ à $B'_c \approx 1$ T afin de restaurer la polarisation nucléaire (cf. figure 4.2.c). Cette bi-stabilité peut aussi être observée en variant la puissance d'excitation [119]

Le modèle développé par les auteurs de ces études, reproduit très bien les expériences en champ longitudinal et le fort champ effectif (~ 3 T) produit par la polarisation des noyaux ($\sim 50\%$), bien qu'il ne traite que comme une relaxation les interactions quadrupolaire et dipôle-dipôle, qui ont pourtant un rôle primordial dans les BQ, comme nous allons le voir dans ce qui suit.

4.1.2 Interaction quadrupolaire dans les BQ

L'interaction quadrupolaire nucléaire couple les spins de noyaux aux champs électrostatiques locaux de la BQ. Les noyaux sont insensibles (avec leur nuage électronique) à un champ électrique homogène, car ils ne possèdent pas de moment électrique dipolaire. Cependant, les noyaux possédant un spin $I > 1/2$ ont une distribution de charge non-sphérique, qui va leur conférer un *moment quadrupolaire* (cf figure 4.3.a). Ce quadrupôle va coupler le noyau aux gradients de champs $\partial^2 V / \partial x_1 \partial x_2$. Les gradients de champ électrique sont rarement présents dans les matériaux massifs (où ils peuvent être associés aux désordres d'alliages), mais sont très importants dans les BQ auto-assemblées à cause du principe même de leur croissance, reposant sur le désaccord de maille important de l'InAs et du GaAs. Comme mentionné précédemment, des contraintes et déformations subsistent dans la BQ, et avec elles, des gradients de champ. Ces gradients peuvent être renforcés par l'interdiffusion de l'indium et du gallium, et avoir une composante fluctuante dans le temps, à cause des créations/annihilations de porteurs dans la BQ [103] et des charges environnantes.

Si l'on considère en première approximation une symétrie rotationnelle de la BQ dans le plan (x, y) de l'échantillon, alors l'axe principal du gradient de champ va se trouver le long de l'axe de croissance z . Cependant, étant donné la forme en cône tronqué ou lentille de la BQ, cet axe va évoluer le long de la structure et former un angle θ avec l'axe z ; on notera cet axe z' (cf schéma 4.3.b). L'interaction quadrupolaire a pour effet de quantifier les projections du spin nucléaire le long de cet axe z' , selon le Hamiltonien [1] :

$$\hat{H}_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left(\hat{I}_{z'}^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) \quad (4.7)$$

où l'énergie $\hbar\omega_Q$ va dépendre de l'espèce chimique et du tenseur des contraintes de la structure $\underline{\epsilon}$ (avec la valeur typique $\epsilon_{zz} \approx 2\%$ [35] dans les BQ d'InP/GaP). Bien que cette interaction ne soit pas magnétique, l'énergie $\hbar\omega_Q$ peut être comparée au

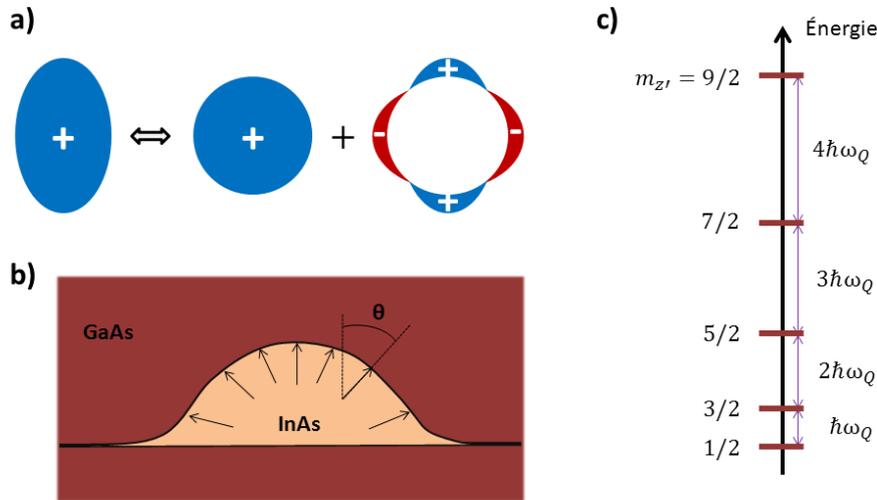


FIGURE 4.3 – a) Schéma du moment quadrupolaire du noyau, créé par la distribution ovale (ellipsoïde) de ses charges. b) Schéma représentant l'axe principal du gradient de champ, et l'évolution de son angle θ avec l'axe z dans la BQ. c) Diagramme des niveaux énergétiques du Hamiltonien quadrupolaire, pour un noyau d'indium ($I = 9/2$). L'axe de quantification z' est donné par l'axe principale du gradient de potentiel, et l'énergie ω_Q dépend de la valeur du gradient (ces deux caractéristiques évoluent au sein de la BQ).

splitting Zeeman induit par un champ magnétique effectif $B_Q \equiv \frac{\hbar\omega_Q}{g_N\mu_N}$, où g_N et μ_N sont respectivement le facteur gyromagnétique et le moment magnétique nucléaire. Des expériences permettent d'estimer $B_Q \simeq 388$ mT pour l'As et $B_Q \simeq 125$ mT pour l'In dans les BQ d'InAs [69], ce qui explique l'importance des effets quadrupolaires sur une large gamme de champ.

On peut voir que ce Hamiltonien provoque une séparation énergétique des projections de spin $m_{z'}$ proportionnelle à $m_{z'}^2$ (visible sur le diagramme 4.3.c). Ces séparations énergétiques inégales vont fortement inhiber les transitions $|\Delta m_{z'}| = 1$ et $|\Delta m_{z'}| = 2$ provoquées par les interactions dipolaires entre les noyaux (traitées dans la partie suivante). L'interaction quadrupolaire va donc permettre une stabilisation de la polarisation nucléaire suivant z' [35].

De premiers signes de l'influence du quadrupole peuvent être distingués à partir des expériences de Krebs et al. présentées précédemment : la prise en compte des effets quadrupolaires est nécessaire pour rendre compte de la faiblesse du taux de polarisation nucléaire, et de son comportement à bas champ [125]. Cependant, en dehors des expériences en champ transverse (que nous présenterons dans la suite), ce sont les expériences de Imamoglu et al. en 2009 qui ont mis en avant la prépondérance des effets quadrupolaires dans les BQ [88], et c'est pourquoi nous allons les décrire ici.

Les auteurs ont réalisé des expériences de désaimantation adiabatique sur une

BQ d'InGaAs/GaAs dans une structure Schottky. Ils exécutent d'abord un pompage optique des noyaux, via l'excitation quasi-résonante du trion X^- , sous un champ longitudinal $B_{z,i} = 1$ T. Des taux de polarisation nucléaire $\sim 50\%$ sont ainsi atteints. La BQ est ensuite laissée dans le noir, et déchargée par la tension *gate* appropriée. Le champ extérieur B_z est alors diminué jusqu'à une valeur $B_{z,f}$, pour laquelle on mesure la polarisation nucléaire via le shift Overhauser de la transition X^- . Les auteurs trouvent deux écarts majeurs au comportement attendu dans les expériences de désaimantation. Tout d'abord la polarisation n'est pas nulle lorsque $B_{z,f} = 0$, alors que l'interaction dipôle-dipôle doit conduire à une dépolarisation totale des noyaux. Cependant, si elle est réalisée dans des conditions adiabatiques, cette dépolarisation est totalement réversible, ce qui n'est pas le comportement observé par les auteurs, qui observent une irréversibilité menant à une diminution de moitié de la polarisation nucléaire lors du retour à $B_{z,i}$ (voir figure 4.4.a).

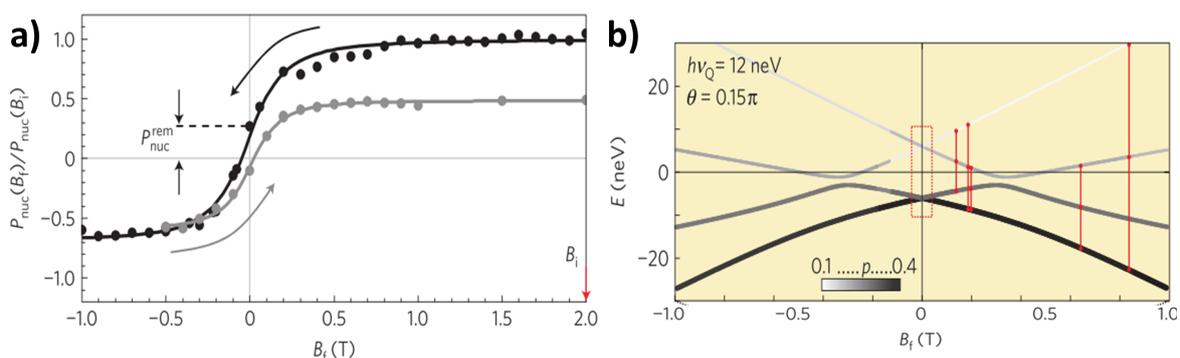


FIGURE 4.4 - a) *Expérience de désaimantation des noyaux, réalisée sur une BQ unique d'InAs/GaAs. Le champ initial $B_{z,i} = 2$ T est indiqué par la flèche rouge (les changements de champ s'opèrent dans le noir). La polarisation nucléaire est déduite du shift Overhauser du trion X^- .* b) *Niveaux d'énergie du Hamiltonien quadrupolaire (pour $\theta = 0,15\pi$ et $\hbar\omega_Q = 12$ neV). Pour certains champs (notés par un trait rouge) les énergies de deux transitions $|\Delta m_z| \neq 0$ coïncident, et autorisent ainsi un échange dans la population des niveaux (représentée par le niveau de gris du trait), qui va aller vers l'équilibre thermique (pour ce champ donné). Figures adaptées de la référence [88]*

Ce comportement peut être entièrement expliqué par l'influence du Hamiltonien quadrupolaire sur les noyaux. En effet, celui-ci va provoquer un écart des énergies des projections de spin m_z prévues par le Hamiltonien Zeeman. Cet écart énergétique va inhiber les échanges et les retournements de spins du bain nucléaire. Cependant, pour certaines valeurs de champs, dites *cross-over*, les énergies associées à deux transitions $|\Delta m_z| \neq 0$ vont coïncider (voir figure 4.4.b), et ainsi autoriser ces transitions, qui vont permettre un retour vers une distribution de Boltzmann des populations de ces niveaux. C'est le passage par ces champs qui va permettre une dépolarisation partielle des noyaux, et l'irréversibilité qui en découle.

Ce comportement confirme le caractère singulier de la physique du spin nucléaire dans les BQ, et notamment invalide le concept de température de spin (défini par Abragam) dans celles-ci. L'interaction quadrupolaire va aussi jouer un rôle prépondérant dans les effets inédits observés lors des expériences en champ transverse, et il est donc important de garder à l'esprit les éléments présentés ici pour l'analyse des résultats de nos expériences.

4.1.3 Interaction dipolaire des spins nucléaires

Enfin, les spins nucléaires sont sensibles au champ produit par le dipôle de leurs voisins, via l'interaction dipôle-dipôle. Cette interaction peut s'écrire [1] :

$$\hat{H}_d = \frac{\mu_N^2}{2} \sum_{j \neq j'} \frac{g_j g_{j'}}{r_{jj'}^3} \left(\hat{I}_j \hat{I}_{j'} - 3 \frac{(\hat{I}_j \cdot \hat{r}_{jj'}) (\hat{I}_{j'} \cdot \hat{r}_{jj'})}{r_{jj'}^2} \right) \quad (4.8)$$

où l'on somme les contributions des voisins j du noyau j' . L'énergie caractéristique de ce Hamiltonien dans le GaAs (avec une distance entre les deux plus proches sites $a = 0,24$ nm, et en considérant le facteur gyromagnétique du gallium 71) est de : $\frac{\mu_N^2}{2} \frac{g_j g_{j'}}{a^3} = 7,610^{-6} \mu\text{eV}$. Cette interaction peut donc être comparée à celle exercée par un champ fluctuant de l'ordre de $\delta B_d \sim 0,15$ mT vu par chaque noyau⁷. La précession du spin d'un noyau dans ce champ se fait en un temps de l'ordre de $\tau_{nuc} \sim 100$ μs , qui est le temps caractéristique de dépolarisation du système de spins nucléaires (dans le noir). En effet, ce Hamiltonien permet un échange entre des projections de spin des noyaux, de façon *séculaire* et *non séculaire* (i.e. ne conservant pas la projection totale), ce qui va induire une dépolarisation en un temps τ_{nuc} . Ce mécanisme est aussi responsable de la diffusion du spin [1], qui va limiter fortement les taux de polarisation nucléaire accessibles dans les matériaux massifs.

Cependant, comme mentionné précédemment, l'interaction du quadrupôle nucléaire va fortement inhiber les transferts de moment nucléaire entre les noyaux de la BQ⁸, ainsi qu'entre les noyaux de la BQ et les noyaux de la barrière de GaAs, qui sont sensibles à un Hamiltonien quadrupolaire différent. Ainsi, l'interaction des quadrupôles nucléaires permet l'isolement du système de $\approx 10^5$ spins nucléaires de la BQ vis-à-vis du réservoir constitué par la barrière [87], et ainsi d'atteindre de forts taux de polarisation nucléaire.

7. Ce champ est suffisamment faible pour être écranté par le champ Knight (~ 10 mT) dans les BQ, ce qui va permettre de polariser les noyaux même sans l'application d'un champ magnétique (contrairement aux premières prédictions).

8. L'interaction dipôle-dipôle est aussi écrantée par les gradients de la fonction d'onde électronique, et les forts gradients de champ Knight qu'ils impliquent [83, 111].

Il est pourtant nécessaire de prendre en compte l'interaction dipôle-dipôle, car elle n'est pas totalement inhibée par l'interaction quadrupolaire (Les transferts de moment entre les niveaux $m_z = \pm 1/2$ subsistent, et avec eux une certaine diffusion du spin nucléaire vers l'extérieur de la BQ), et elle va donc jouer un rôle limitant dans les expériences de PND.

Dans cette partie, nous avons présenté les trois interactions majeures pour la physique du spin nucléaire dans les BQ. Le rôle prépondérant de l'interaction hyperfine est fortement modulé par l'interaction quadrupolaire, et limité par l'interaction dipolaire. Ces trois forces en présence vont avoir une importance relative qui va dépendre fortement des conditions expérimentales, et vont produire un large panel d'observations expérimentales. Les expériences de PND en champ transverse sont celles qui présentent les effets les plus surprenants, et encore mal compris. Nous en présenterons les exemples les plus marquants, de deux expériences aux conditions expérimentales proches de celles utilisées pour les expériences qui suivent, et dont la compréhension sera utile afin de mieux appréhender nos résultats expérimentaux.

4.2 Observations de PND en champ transverse

Dans cette partie, nous présenterons deux observations expérimentales (réalisées par les équipes de R.I. Dzhioev en 2007 et de O. Krebs en 2009) associées à une PND dans les BQ en champ transverse. On s'attend a priori à une disparition des effets de PND en champ transverse, dès lors que le champ appliqué B_x est supérieur au champ Knight (~ 10 mT), et provoque la précession des spins nucléaires. Ces expériences infirment ce comportement, et soulignent l'importance des effets quadrupolaires dans les BQ. Les éclaircissements apportés par ces expériences seront utiles à l'analyse de nos résultats, présentés dans la partie suivante.

4.2.1 Expériences de Dzhioev en 2007

L'équipe de Dzhioev a étudié des ensembles de BQ auto-assemblées d'InP dopées n [35] (la polarisation de la photoluminescence observée est donc *négatives* [74]). Le phosphore a un spin $1/2$ qui le rend insensible aux effets quadrupolaires, contrairement à l'indium, pour lequel les contraintes de la structure vont imposer une énergie quadrupolaire similaire à celle présente dans les BQ d'InAs : $\nu_Q \sim 1$ MHz.

Les auteurs ont mesuré le taux de polarisation circulaire de la photoluminescence de l'échantillon en fonction du champ transverse $\rho_c(B_x)$. Celle-ci est directement proportionnelle à la projection du spin électronique moyen le long de l'axe d'excitation : $\rho_c \propto -2\langle \hat{S}^e \rangle_z$, et suit normalement l'évolution associée à l'effet Hanle (introduit dans la partie III.1) :

$$\rho_c(B_x) = \frac{\rho_c(0)}{1 + (B_x/B_{1/2})^2} \quad (4.9)$$

où la largeur à mi-hauteur de la Lorentzienne $B_{1/2} = \hbar/g_\alpha\mu_B\tau^*$ dépend de g_α , le facteur de Landé de l'électron (du trou) pour la luminescence du trion X^+ (resp. X^-), et du temps de vie effectif du spin τ^* ⁹.

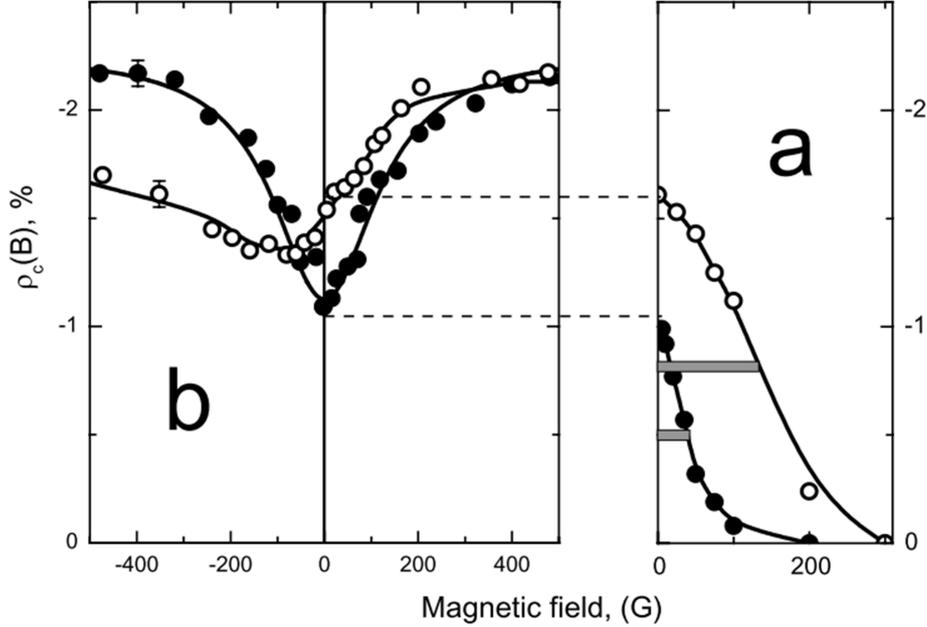


FIGURE 4.5 – a) Polarisation circulaire de la photoluminescence de l'ensemble de BQ d'InP dopées n, sous l'application d'un champ transverse. On observe que la largeur de la lorentzienne mesurée dans le cas d'une excitation σ^+ constante (points blancs), est trois fois plus importante que celle mesurée lors d'une excitation modulée en polarisation σ^+/σ^- (points noirs). b) Polarisation circulaire mesurée en champ longitudinal. Le décalage du minimum de la courbe de polarisation en présence de PND est associé au rôle stabilisateur du quadrupôle nucléaire. Figure issue de la référence [35].

Comme on peut le voir sur la figure 4.5.a, les auteurs observent une largeur à mi-hauteur $B_{1/2}$ trois fois plus importante dans le cas d'une excitation d'hélicité constante σ^+ , par rapport à une excitation modulée en polarisation σ_+/σ_- à 26 kHz (où la PND est *a priori* exclue). L'élargissement est attribué à l'installation d'une PND, stabilisée par les effets quadrupolaires. Comme décrit précédemment, ceux-ci vont lever la dégénérescence des projections du spin nucléaire de l'indium le long d'un axe de quantification z' . L'écart d'énergie induit est équivalent à celui provoqué par un champ $B_Q \sim 100$ mT, supérieur aux champs B_x appliqués dans l'étude. Le champ quadrupolaire va alors inhiber la précession des spins nucléaires, et provoquer leur stabilisation le long de z (axe principal des gradients). L'établissement d'un champ

9. On rappelle que le temps de vie du spin τ^* de cette expression est généralement un temps composite dépendant du temps de relaxation du spin T_1 et du temps de recombinaison τ_{rad} et ainsi : $\frac{1}{\tau^*} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{\tau_{rad}}$. Cependant, on étudie ici un ensemble et on doit prendre en compte le temps de déphasage des spins (T_Δ introduit dans la partie 1.4), et donc : $\frac{1}{\tau^*} = \frac{1}{T_\Delta} + \frac{1}{\tau_{rad}}$

nucléaire $B_n^z \propto \langle S^e \rangle_z \vec{z}$ permet en effet d'expliquer un élargissement par rapport à la courbe de Hanle. Cette interprétation est confirmée, selon les auteurs, par le décalage du minimum de $\rho_c(B_z)$ (en champ longitudinal, c.f. 4.5.b), qui n'est pas attribué au champ Knight (comme dans Lai et al.[73]), mais au champ B_n^z .

4.2.2 Expériences de Krebs en 2009

Krebs et *al.* ont réalisé une expérience similaire, mais avec des BQ d'InAs/GaAs dopées p [68]. L'observation de ρ_c est cette fois réalisée avec des BQ uniques, et permet de déterminer quasi-directement le champ Overhauser grâce aux décalages spectraux. Sous une excitation quasi-résonante, et d'hélicité constante, les auteurs observent un élargissement d'un facteur dix par rapport à la courbe Hanle attendue (cf figure 4.6.a).

Un tel comportement pour des champs appliqués $B_x \sim 1\text{T}$, ne peut être expliqué par la création d'un champ nucléaire B_n^z d'une magnitude plausible¹⁰. L'élargissement *anormal* de la courbe Hanle est expliqué par un champ nucléaire dans le plan B_n^x , anti-parallèle au champ appliqué, et qui permet de remplir la condition $|B_n^x + B_x| < \text{Max}(|B_n^z|, B_{1/2})$. Cette hypothèse est soutenue par les observations de photo-luminescence polarisée linéairement, qui montrent que l'écart Zeeman associé à l'électron est annulé dans la zone où la PND se manifeste (alors que celui associé au trou n'est pas affecté), comme on peut le voir sur la figure 4.6.b.

Le mécanisme permettant la PND dans le plan de l'échantillon, repose avant tout sur une faible polarisation nucléaire suivant z qui fait pencher l'axe de précession \vec{B}_{tot} du spin électronique, et induit une composante non-nulle de celui-ci suivant x : $\langle S_e^x \rangle$. Cette composante va pouvoir être transférée aux noyaux via les mécanismes de flip-flop associés à l'interaction hyperfine¹¹. La polarisation nucléaire créée suivant x est stabilisée par les effets quadrupolaires, dont l'axe de quantification a une composante suivant x ¹². Suivant la même tendance qu'en champ longitudinal (illustrée sur le schéma 4.2.a), la PND est favorisée lorsque l'écart Zeeman électronique est le plus faible, et donc lorsque le champ appliqué est quasiment compensé. Ce dernier point implique, comme en champ longitudinal, une bi-stabilité de la polarisation nucléaire lors de la montée et descente du champ appliqué, bien visible dans les expériences de Krebs et al.

Les effets quadrupolaires sont primordiaux dans ce mécanisme de polarisation

10. On peut ajouter que la dynamique du spin prévue par Dzhioev pour un champ nucléaire suivant z change considérablement la forme de l'évolution de $\rho_c(B_x)$, qui s'écarte d'une Lorentzienne pourtant observée par Dzhioev et al.

11. Ce mécanisme a été mis en évidence par la suite par Urbaszek et al[111] dans des BQ non-contraintes de GaAs.

12. Notamment sur les bords de la BQ, à cause du tilt de l'axe principal des contraintes (cf schéma 4.3.c).

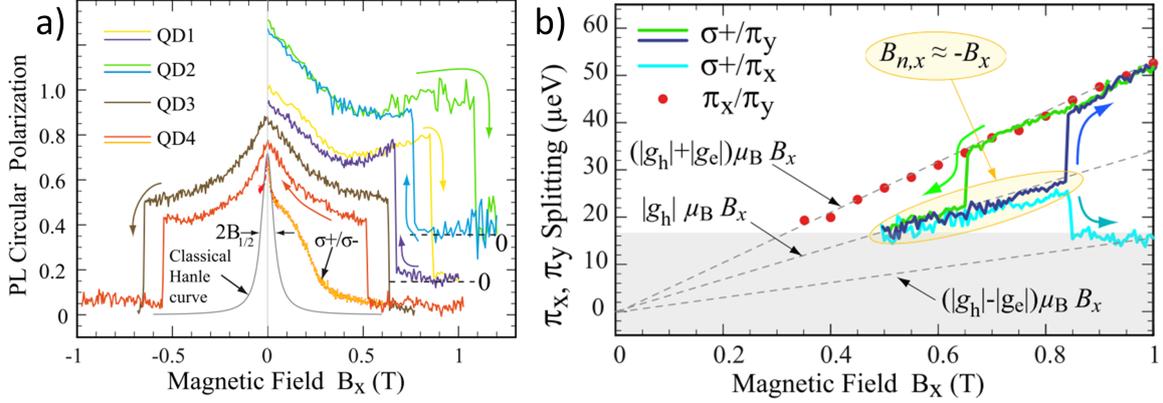


FIGURE 4.6 – a) Mesure de la polarisation circulaire associée au trion X^+ dans des BQ d'InAs/GaAs, excitées de façon quasi-résonante. Les courbes présentent une forme différente, et une largeur bien plus importante que la courbe théoriquement prédite par l'effet Hanle (en noir). Les courbes présentent aussi une forte bi-stabilité, sur une plage de plusieurs centaines de mT. b) Évolution des écarts Zeeman des raies de photoluminescence polarisées linéairement en fonction du champ. Les polarisation π_x et π_y permettent de distinguer l'énergie de Zeeman associée à l'électron et au trion, et de vérifier que l'énergie Zeeman de l'électron est nulle dans la gamme de champ où l'effet se manifeste. Figures adaptées de la référence [68].

nucléaire, car ils permettent la stabilisation d'une composante de la polarisation nucléaire suivant z , qui est indispensable au transfert de polarisation de $\langle S_e^z \rangle$ vers $\langle S_e^x \rangle$, puis vers les noyaux. L'absence d'effets quadrupolaires dans les BQ non-contraintes de GaAs, explique certainement l'absence de cet élargissement anormal de la courbe Hanle dans ces BQ [17].

Certains points restent cependant à comprendre. La dynamique de la polarisation nucléaire n'est pas encore modélisée (en sus, la courbe Hanle *normale* n'est pas recouverte pour une modulation σ_+/σ_- à 40kHz). De plus, le rôle exact de l'interaction quadrupolaire n'est pas déterminé, ni le phénomène limitant le champ critique d'écroulement de la polarisation nucléaire. Une nouvelle observation de ce phénomène dans les BQ d'InAs pourrait donc fournir des nouveaux éclaircissements sur les processus en jeu ; c'est ce que nous nous proposons de faire dans le chapitre suivant.

4.3 Résultats expérimentaux et analyse

Dans cette section, nous allons présenter nos observations expérimentales associées à l'établissement d'une PND. Ces expériences ont été réalisées grâce au dispositif pompe-sonde présenté dans les chapitres précédents. Nous présenterons d'abord les conditions expérimentales permettant une première observation de PND, à champs nul. Nous verrons ensuite comment cette PND se manifeste sous application d'un champ

transverse \vec{B}_a^x , et évolue avec les conditions d'excitation (rapport cyclique et puissance). Puis nous étudierons l'évolution de la PND avec le champ transverse appliqué, grâce à l'expérience pompe-sonde. Enfin, une expérience permettant de mesurer sa dynamique d'établissement sera présentée. En dernier lieu, nous ferons un récapitulatif de nos observations, ainsi que des pistes d'explications, à la lumière des interactions en jeu et de leurs observations (présentées dans les deux parties précédentes).

4.3.1 Conditions d'excitation et renormalisation

Les expériences permettant d'observer une PND sont réalisées dans des conditions proches de celles des expériences présentées dans le chapitre précédent. On utilise toujours l'expérience pompe-sonde résolue en temps, qui permet d'observer le PCD. Les échantillons de BQ étudiés sont le 74K31 (utilisé au chapitre précédent), ainsi que l'échantillon 93P134, dont les conditions de croissance et le dopage sont identiques, et dont la transition fondamentale du trion X^+ est à une longueur d'onde sensiblement identique (910 nm).

Les expériences sont encore une fois menées dans un régime d'excitation pulsée ($f_L = 76,6$ MHz), et l'application d'un champ magnétique transverse \vec{B}_a^x nous situe dans les conditions de blocage de phase décrites dans le chapitre précédent. Étant donné la faible influence de la polarisation nucléaire sur le spin du trou (décrite dans la partie 4.1.1), on s'attend à ce que l'apparition d'une PND n'influe que très peu sur le blocage de phase, ce qui sera vérifié expérimentalement. Les observations liées à une PND se font donc essentiellement sur la précession du spin électronique, observable aux délais pompe-sonde positifs ($\Delta t \lesssim \tau_{rad}$), à la pulsation moyenne de l'ensemble de BQ $\bar{\omega}_e$. Nous utilisons l'excitation à une impulsion pompe, afin que la plage temporelle observable ne soit pas gênée par l'arrivée de la deuxième impulsion pompe.

La différence fondamentale avec les expériences menées dans le chapitre précédent est la modulation de la polarisation circulaire de l'excitation. Dans les expériences précédentes, la polarisation des impulsions pompes était modulée σ_+/σ_- , à une fréquence $f_{pompe} \sim 100$ kHz. Il a été montré que dans ces conditions, une polarisation nucléaire de la BQ était exclue [34], car les temps de construction de la PND dépassent la milliseconde (nous reviendrons sur cette estimation dans la partie 4.3.5). En effet, dans ce cas, la polarisation du spin électronique injecté dans la BQ a une moyenne nulle sur une échelle de temps de la milliseconde. En revanche, si on fait varier le *rapport cyclique* du modulateur électro-optique, on peut produire des trains d'impulsions dont la polarisation sera asymétrique (par exemple $90\%\sigma_+/10\%\sigma_-$, voir schéma 4.7.a).

Dans le cas d'une excitation de rapport cyclique D , la polarisation moyenne du spin de l'électron injecté dans la BQ n'est pas nulle, et vaut : $\langle \hat{S}_e \rangle = 2(D - \frac{1}{2}) \langle \hat{S}_e \rangle_{max}$, où $\langle \hat{S}_e \rangle_{max}$ est la polarisation maximale, obtenue pour une excitation d'hélicité constante. Cette polarisation peut être transférée au bain de spins nucléaires via l'interaction hy-

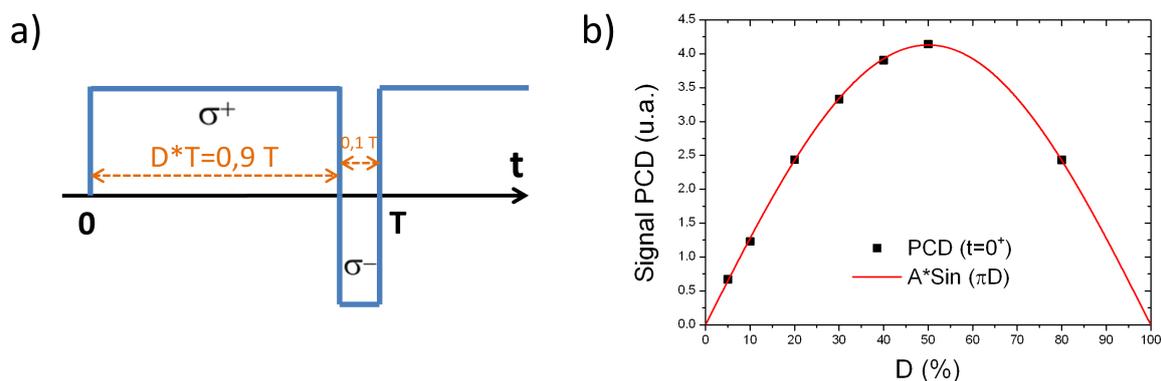


FIGURE 4.7 – a) Schéma représentant l'évolution temporelle de la polarisation d'une excitation modulée σ^+/σ^- avec un rapport cyclique $D = 0,9$. b) Amplitude de signaux de PCD démodulé, pour différents rapports D d'excitation. L'amplitude suit bien une évolution en $\sin(\pi D)$, et leur renormalisation par ce facteur permet leur comparaison.

perfine (mécanismes flip-flop du Hamiltonien (4.4)). Le champ nucléaire moyen \vec{B}_n est alors non-nul, et peut être détecté via son influence sur la précession du spin électronique.

Mais avant d'étudier ces effets, il est nécessaire de prendre en compte l'influence du rapport-cyclique D sur l'amplitude du signal démodulé. En effet, le signal étudié est dé-modulé grâce à sa multiplication par la première harmonique du signal référence. Or l'amplitude de cette première harmonique (et donc du signal), va évoluer avec D . En effet, pour une tension de modulation $u(t)$ en créneau d'amplitude unitaire, de rapport cyclique D et de fréquence fondamentale f_{pompe} , on a :

$$A(f_{pompe}) = \int_{-\frac{T}{2}}^{+\frac{T}{2}} u(t) \cos(2\pi f_{pompe}t) dt = \int_{-\frac{D \cdot T}{2}}^{+\frac{D \cdot T}{2}} \cos(2\pi f_{pompe}t) dt = \frac{1}{\pi f_{pompe}} \sin(\pi D) \quad (4.10)$$

La figure 4.7.b montre l'amplitude du signal $PCD(\Delta t = 0^+)$ en fonction du rapport D . Les amplitudes sont proportionnelles à $\sin(\pi D)$, et par la suite nous utiliserons ce facteur pour renormaliser les signaux. Cette procédure donne des résultats très satisfaisants, et nous permet de comparer les signaux obtenus sans nous soucier des différences d'amplitudes liées à la démodulation.

4.3.2 Première observation de polarisation dynamique des noyaux en champ nul

On souhaite déterminer si la dynamique du spin électronique de l'ensemble, est affectée par ces nouvelles conditions d'excitation. Une première observation est réalisée sans application d'un champ, sur l'échantillon 74K31 (ensemble de BQ dopées p). Nous

présenterons d'abord les résultats de l'expérience, puis une modélisation simple par un modèle de populations, et enfin une modélisation prenant en compte la dynamique de précession du spin électronique en présence de l'interaction hyperfine.

Expérience et résultat

On observe l'évolution du signal de *PCD* des BQ excitées à la résonance (917 nm), sur l'ensemble des délais accessibles avec la ligne à retard, pour une modulation de la pompe σ^+/σ^- , d'abord symétrique ($D = 50\%$), puis asymétrique ($D = 90\%$). Les résultats des expériences sont renormalisés suivant l'équation (4.10), et présentés sur la figure 4.8. La différence entre les deux courbes n'est que légèrement perceptible, pour deux raisons distinctes : d'abord le champ nucléaire affecte peu la dynamique du spin du trou, et ensuite l'observation de la dynamique du trion se fait sur une plage temporelle courte ($\Delta t \lesssim \tau_{rad} = 700$ ps) d'une part, et est fortement affectée par les inhomogénéités de l'échantillon d'autre part. Cependant, lorsqu'on trace les signaux en échelle semi-logarithmique, on perçoit une légère différence de leurs déclins temporels aux délais courts (voir encadré de la figure 4.8).

Modélisation des populations

Afin de quantifier cette différence, on établit d'abord un modèle simple, basé sur la dynamique des populations du système à quatre niveaux : $\{\rho_{T\uparrow}, \rho_{T\downarrow}, \rho_{h\uparrow}, \rho_{h\downarrow}\}$. Cette dynamique est représentée sur le schéma qui suit, et peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{T\uparrow} &= -\frac{\rho_{T\uparrow}}{\tau_{rad}} - \frac{(\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow})}{T_e} \\ \dot{\rho}_{T\downarrow} &= -\frac{\rho_{T\downarrow}}{\tau_{rad}} + \frac{(\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow})}{T_e} \\ \dot{\rho}_{h\uparrow} &= +\frac{\rho_{T\uparrow}}{\tau_{rad}} - \frac{(\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow})}{T_h} \\ \dot{\rho}_{h\downarrow} &= +\frac{\rho_{T\downarrow}}{\tau_{rad}} + \frac{(\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow})}{T_h} \end{aligned}$$

Où les variables $\rho_{T(h)\uparrow(\downarrow)}$ sont les populations de chaque état du système. Ce système d'équations permet de prendre en compte le déclin radiatif du trion (en un temps caractéristique τ_{rad}) d'une part, et le déclin de la polarisation du spin du trion (resp. du trou) qui se fait en un temps caractéristique T_e (resp. T_h) d'autre part¹³. Le système est résolu formellement grâce au logiciel *Mathematica*, et permet de donner

13. Ce modèle, considérant uniquement un déclin exponentiel de la population n'est pas exact, mais se révèle utile dans l'étude d'ensemble, où les dynamiques fines sont difficilement observables. Le traitement par le modèle prenant en compte la dynamique de Merkulov sera fait dans la suite.

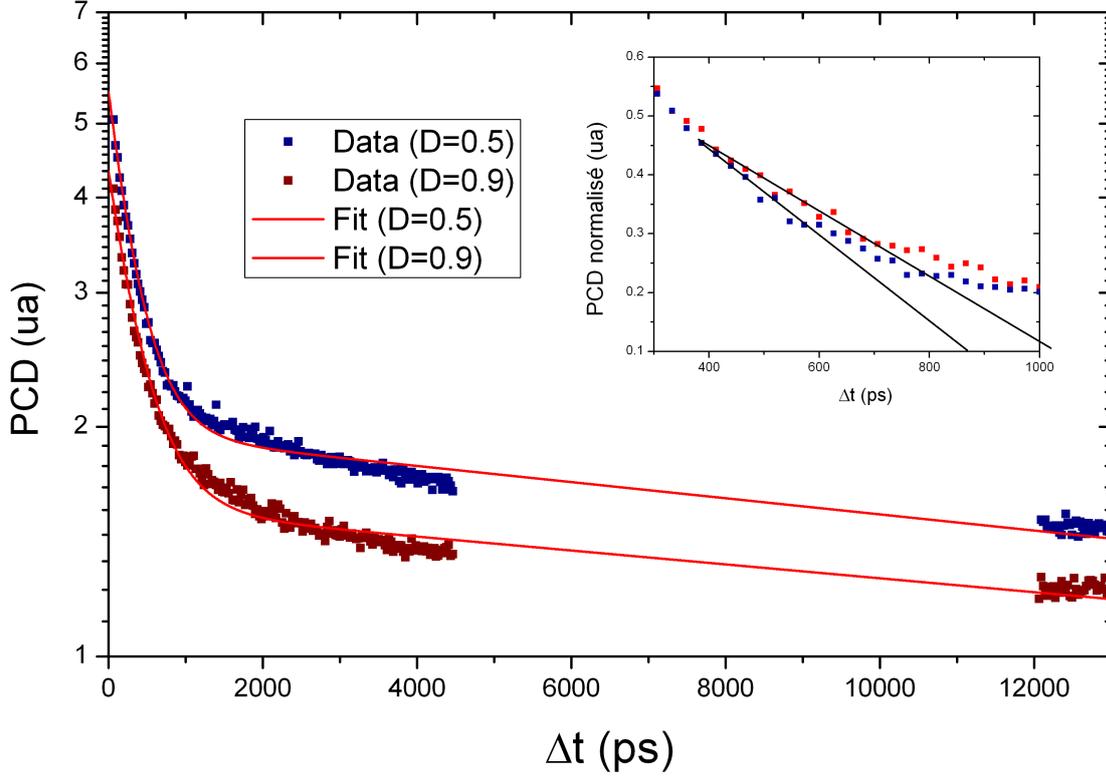


FIGURE 4.8 – Signal PCD en champ nul, avec l'échantillon $74K31$, pour une excitation modulée σ^+/σ^- , $D = 0,5$ et $D = 0,9$. Les données sont présentées en échelle semi-log, avec les ajustements associés à la dynamique des populations. Les données présentent des fonds différents. Les points normalement associés à des délais négatifs, sont présentés avec leur délai réel par rapport à l'impulsion excitatrice. En encadré : zoom sur le régime transitoire (sur les données renormalisées), et droites directrices mettant en valeur la différence des dérivées.

l'évolution temporelle de la variable $PCD(\Delta t) = (\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}) - (\rho_{T\uparrow} - \rho_{T\downarrow})$. L'expression finale sert à l'ajustement des données expérimentales (présenté sur la figure 4.8).

Le temps radiatif τ_{rad} est fixé à 700 ps grâce aux études précédentes. Le temps de déclin du spin du trou est ajusté grâce aux délais longs $\Delta t \sim T_L = 13150$ ps. Les T_h ajustés sont $T_h(D = 50\%) = 14320$ ps et $T_h(D = 90\%) = 14850$ ps. Ce temps de déclin ne varie donc quasiment pas avec D , et correspond au temps de déphasage d'un ensemble de spins de trous soumis à un champ magnétique nucléaire fluctuant. Ce déclin peut être modélisé par la théorie de Merkulov [92, 120], et a déjà été mesuré au sein de notre équipe [36] par une méthode similaire.

En revanche, le temps de déclin T_e ajusté varie fortement avec D . On ajuste : $T_e(D = 50\%) = 520$ ps et $T_e(D = 90\%) = 820$ ps. Le temps $T_e(D = 50\%)$ équivaut à T_Δ (défini dans le modèle de Merkulov), précédemment mesuré pour cet échantillon. Si le temps de déclin T_e mesuré pour $D = 90\%$ augmente, c'est nécessairement à cause

d'un effet de PND. Il ne peut s'agir d'une réduction des fluctuations du champ nucléaire, car elle nécessite une polarisation des noyaux de la BQ $\sim 50\%$ [37], qui est loin d'être atteinte dans nos conditions expérimentales (excitation pulsée, modulée en polarisation et sans champ appliqué). Cependant, on peut supposer que la polarisation asymétrique (donc en moyenne non-nulle) du faisceau pompe permet de créer une polarisation moyenne non-nulle des noyaux équivalente à un champ : $\langle \vec{B}_n \rangle = B_n^z \vec{z} \neq \vec{0}$ ¹⁴, qui en retour stabilise le spin de l'électron.

Modélisation de la dynamique du spin électronique

Le modèle simple ayant permis d'identifier un effet de PND, on utilise maintenant afin de quantifier $B_{n,z}$, un modèle plus complet (analogue à celui développé dans la partie précédente). Pour mieux visualiser leurs déviations, on fait la différence entre les courbes expérimentales (renormalisées en fonction de D), visible sur la figure 4.9. La différence marque un creux, prévu par la dynamique de Merkulov (présenté dans la section 1.4, et observé une seule fois, grâce à une expérience sur une BQ unique [32]). Enfin, la différence entre les deux courbes ne retombe pas à zéro, même une fois que tous les trions se sont recombinés ($\Delta t \sim 2 - 3\tau_{rad}$). L'écart restant est donc nécessairement dû à une différence de la polarisation du trou résident ($\rho_{h\uparrow} - \rho_{h\downarrow}$) entre les deux configurations d'excitation. Cette différence provient de l'influence importante de T_e dans le mécanisme de pompage du trou résident. Le rallongement de T_e diminue fortement la probabilité du flip du trion pendant le temps de vie¹⁵, et produit en retour une baisse du taux de polarisation accessible pour le trou résident.

On reproduit ces résultats grâce à une simulation prenant en compte la dynamique complète du système à quatre états ; et notamment en intégrant la dynamique du spin électronique autour des fluctuations du champ nucléaire, décrite dans la section 1.4. De plus, on suppose que pour $D = 90\%$ les états trion sont soumis à un Hamiltonien Zeeman supplémentaire : $\hat{H}_{z,n} = \frac{g_e \mu_B B_n^z \vec{z}}{2} \cdot \hat{S}$, où le champ $B_n^z \vec{z}$ a un rôle identique à un champ appliqué. De nombreux paramètres de la simulation sont fixés grâce aux simulations conduites dans le chapitre précédent¹⁶, et on fait varier uniquement B_n^z et

14. On peut aisément supposer que la composante principale du champ nucléaire est orientée suivant \vec{z} , car les mécanismes flip-flop (conservant le spin total) mettent en jeu les électrons du trion, dont le spin initial est orienté suivant \vec{z} . De plus, de nombreuses expériences ont montré le rôle stabilisateur des interactions quadrupolaires lors de la création d'une PND suivant \vec{z} , en champ extérieur nul.

15. En effet, le pompage du système à quatre niveaux repose sur le déséquilibre entre T_e et T_h , et sur le retournement du spin du trion excité durant son temps de vie [7, 47]. La proportion des trions gardant leur polarisation initiale peut-être estimée comme : $P = \frac{1}{\tau_{rad}} \int_0^{+\infty} e^{-\frac{t}{T_e}} e^{-\frac{t}{\tau_{rad}}} dt = \frac{1}{1 + \frac{\tau_{rad}}{T_e}}$. Ainsi $P(T_e = 500ps) = 0,42$ et $P(T_e = 800ps) = 0,54$. L'évolution du T_e produit donc un effet important sur le pompage.

16. Le déphasage du spin du trou aux délais courts peut cette fois être modélisé phénoménologiquement par un $T_2^{*,h}$.

θ (l'angle de Rabi associé à l'impulsion pompe). Comme on peut le voir sur la figure 4.9, les courbes sont bien reproduites pour les valeurs : $\theta = \pi/2$ et $B_n^z = 50 \pm 25$ mT.

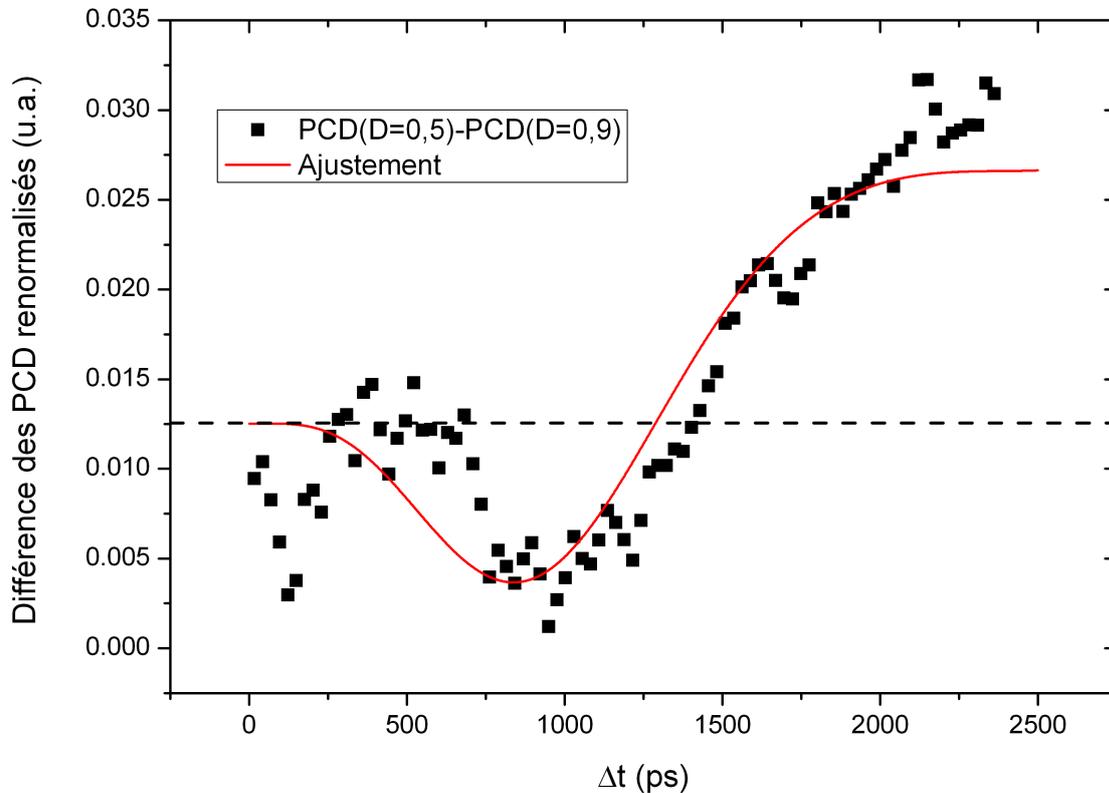


FIGURE 4.9 – Différence des signaux de PCD obtenus (puis renormalisés) pour une excitation $D = 0,5$ et $D = 0,9$ (le délai nul $\Delta t = 0^+$ nous sert à déterminer le fond, présent sur les figures précédentes). La dynamique de précession du trion marque un creux à $\Delta t \approx 2T_\Delta \sim 1$ ns. La différence subsistant aux délais $\Delta t \sim 2000$ ps, provient des différences de polarisation du trou. L'ajustement présenté est réalisé grâce à une simulation de la dynamique du système, prenant en compte les fluctuations du champ nucléaire $\Delta_n = 50$ mT, et une valeur moyenne de celui-ci $B_n^z = \Delta_n$ (dont l'action est similaire à celle d'un champ extérieur, du fait de sa définition).

Cette expérience nous a donc permis de mettre en évidence la création d'une polarisation nucléaire suivant z sans champ appliqué (souvent observée dans la littérature des BQ en excitation continue [73, 111]). Nos conditions d'excitation (résonante, pulsée, avec une modulation de rapport $D \neq 0,5$) sont donc propices à la formation d'une PND ; et nous allons étudier celle-ci lors de l'application d'un champ transverse.

4.3.3 Effets nucléaires lors d'une excitation asymétrique en champ transverse

Nous allons maintenant décrire les effets provoqués par une excitation σ^+/σ^- asymétrique ($D \neq 0,5$) lors de l'application d'un champ transverse. La figure 4.10,

présente les courbes obtenues pour différents rapports D (renormalisées en fonction de celui-ci), lors de l'application d'un champ transverse $B_x = 340$ mT. L'échantillon utilisé est le $74K31$, et les conditions expérimentales sont (sauf pour D) identiques à celles utilisées dans le chapitre précédent, pour la température ($T \sim 2$ K), les puissances ($P_{pompe} = 5$ mW, $P_{sonde} = 50\mu\text{W}$), et les fréquences de modulation ($f_{pompe} = 50$ kHz, $f_{sonde} = 1,5$ kHz).

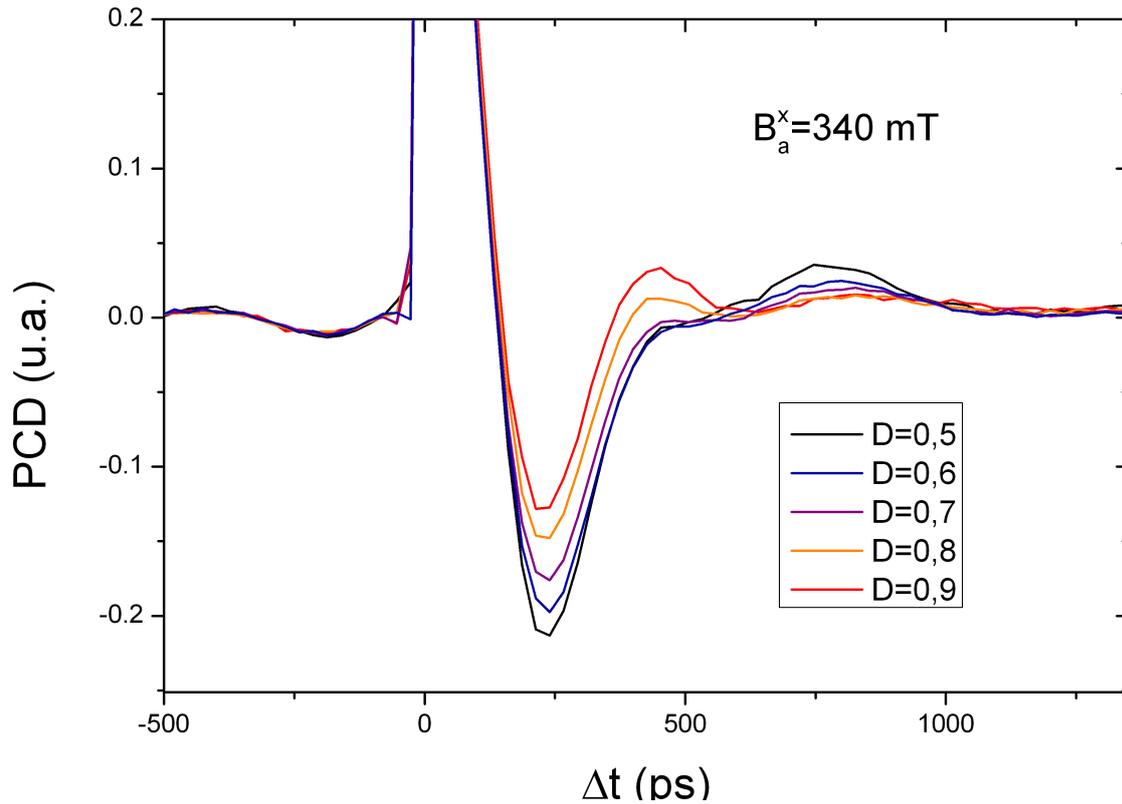


FIGURE 4.10 – Signal PCD obtenu avec l'échantillon $74K31$, en champ transverse appliqué $B_a^x = 340$ mT, avec une excitation résonante modulée σ^+/σ^- pour différents rapports D . Dans les courbes à fort D , la précession du spin électronique est inhibée.

On remarque immédiatement que le rapport D de l'excitation influe de façon importante sur le régime transitoire (i.e. le signal observé durant le temps de présence du trion dans la BQ). Pendant ce régime transitoire, le signal observé est la somme des signaux de précession du trou et du trion. On peut cependant distinguer ces précessions, grâce à notre connaissance (établie au chapitre précédent) de \bar{g}_e et de \bar{g}_h . On remarque que le signal associé au trou n'est quasiment pas affecté par le rapport D de l'excitation, et que ni l'amplitude, ni la fréquence de son oscillation aux délais négatifs $\Delta t \sim 0^-$ ne changent¹⁷. Ce qui confirme encore une fois, l'hypothèse de faible

17. On rappelle que dans ces conditions expérimentales (une seule impulsion pompe), de nombreux modes respectent la condition de blocage de phase, et la pulsation de la précession aux délais négatifs ($\Delta t \sim 0^-$) est la moyenne de l'ensemble ($\bar{\omega}_h = \bar{g}_h \mu_B |\vec{B}|$).

interaction du spin du trou avec le bain nucléaire.

La précession du spin électronique est en revanche fortement affectée. On remarque que plus le rapport D augmente, plus l'amplitude associée à sa précession diminue. Il est difficile d'identifier une modification de la fréquence de précession, car la période est comparable au temps de vie (on en observe seulement une demi période de la précession).

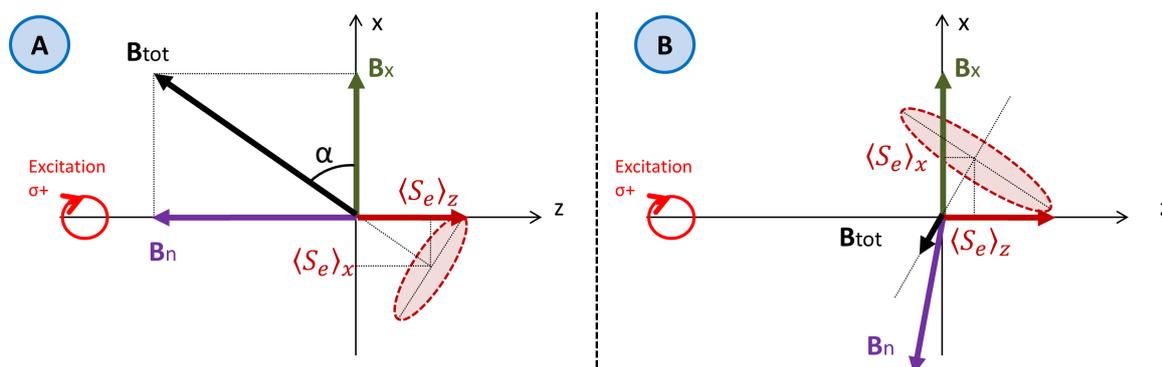


FIGURE 4.11 – a) Schéma représentant le cas A : une forte polarisation nucléaire suivant l'axe z . b) Schéma représentant le cas B : une polarisation nucléaire suivant l'axe x , anti-parallèle au champ appliqué. Il est important de noter que dans cette géométrie, le champ nucléaire \vec{B}_n^x doit être plus important que \vec{B}_a^x .

Configurations de champs nucléaire possibles

Cette suppression de la précession électronique peut être associée à deux dynamiques de polarisation nucléaire distinctes (illustrées sur la figure 4.11) :

- Géométrie A (figure 4.11.a) : une forte polarisation nucléaire suivant l'axe z , qui provoque la précession du spin électronique avec un vecteur de précession $\vec{\Omega}_{z'} = g_e(\vec{B}_n^z + \vec{B}_a^x)$. L'inclinaison α de l'axe de précession avec l'axe x provoque une forte diminution de l'amplitude de la précession observable suivant z , $\propto \cos^2 \alpha$. Cette géométrie est celle proposée par Dzhioev [35].
- Géométrie B (figure 4.11.b) : une forte polarisation nucléaire suivant l'axe x , anti-parallèle au champ appliqué, qui provoque un fort ralentissement de la précession du spin électronique (car $\vec{B}_{tot} = \vec{B}_a^x + \vec{B}_n^z \approx \vec{0}$). Ce mécanisme est celui avancé par Krebs et al.[68].

Dans ces deux cas, les effets quadrupolaires doivent jouer un rôle important, et la PND est particulièrement difficile à modéliser (a fortiori en régime d'excitation pulsée et modulée).

On note d'abord que dans ces deux géométries, l'excitation d'un trion $|T \downarrow\rangle$ par une impulsion σ^+ , ou d'un trion $|T \uparrow\rangle$ par une impulsion σ^- , vont être responsables de

dynamiques du spin électroniques opposées, et de polarisations nucléaires symétriques par rapport au plan de l'échantillon (xOy). La démodulation du signal excité par une pompe modulée σ^+/σ^- reste donc valide, et quelque soit la géométrie, le signal obtenu pour $D = x$ est l'exact opposé de celui obtenu avec $D = (1 - x)$.

Ces deux cas peuvent rendre compte de nos observations, avec de légères différences. Les différences entre les deux dynamiques prévues sont cependant difficiles à observer avec le signal de *PCD*, car il ne donne accès qu'à la projection des dynamiques de spin. De plus, les paramètres (fréquences, amortissements, ...) de ces dynamiques sont proches pour cet échantillon et ne permettent que difficilement l'observation de plus d'une période de la précession du spin électronique.

Par soucis d'exhaustivité, nous présentons ici les deux propositions faites dans la littérature, et tenterons de déterminer laquelle s'applique à notre échantillon (dans ces conditions expérimentales).

- Dans le cas *A*, la précession électronique observée suivant l'axe optique z devrait être d'une amplitude moindre, mais de fréquence très élevée (car $\vec{B}_n^z = 2 - 3\vec{B}_a^x$). Elle doit s'accompagner d'une forte composante *figée* suivant z , et déclinant en un temps composite $\tau_e = 1/(\frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{1}{T_\Delta})$.
- Dans le cas *B*, sous réserve que le champ nucléaire soit suffisamment important¹⁸, le spin électronique est quasiment *figé* suivant son axe d'initialisation z , et le signal de *PCD* associé doit lui aussi décliner en τ_e .

L'observation d'une augmentation avec D , d'une composante décroissante exponentiellement en τ_e , reste cependant difficile sur notre échantillon (du fait de ses fortes inhomogénéités), et ne permet pas de distinguer entre les deux géométries.

Afin de poursuivre notre étude, et de distinguer entre les deux géométries de *PND* proposées, nous allons dans la partie suivante procéder à l'observation de l'évolution de ces effets avec le champ appliqué \vec{B}_a^x .

4.3.4 Évolution en champ du signal de *PCD*

Toutes les courbes présentées dans la section précédente ont été obtenues sous application d'un champ $B_a^x \in [200, 400]$ mT. C'est en effet dans cette gamme de champ que les effets de *PND* sont les plus visibles (sur cet échantillon). En dessous de 200 mT, les précessions sont trop lentes pour permettre de distinguer facilement électron et trou (aussi bien pour l'expérimentateur que pour les ajustements), comme on a pu le voir dans la section 4.3.2. Au delà de 400 mT, nous allons voir que les effets observés associés à la *PND* s'estompent.

18. Pour rendre la période de précession comparable au temps de vie radiatif du trion, il est nécessaire que $|\vec{B}_{tot}| \sim \frac{h}{g_e \mu_B \tau_{rad}}$; ce qui représente dans ce cas un champ total ~ 340 mT. La lenteur de cette précession, associé à son amortissement rapide, va rendre difficile l'observation d'un ralentissement supplémentaire.

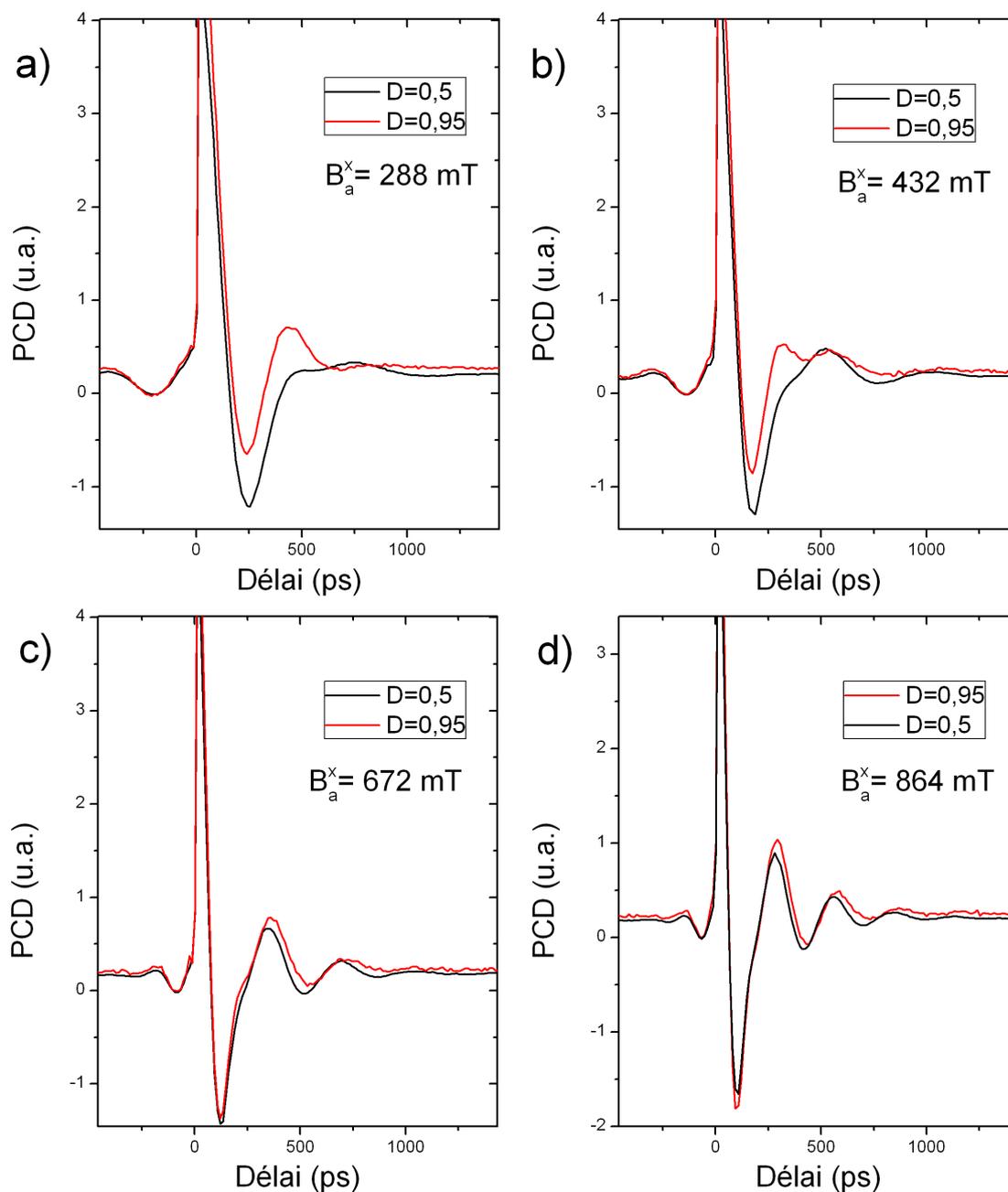


FIGURE 4.12 – Signaux de PCD obtenus avec l'échantillon ${}^{74}\text{K}31$, pour une excitation modulée σ^+/σ^- avec $D = 0,5$ et $D = 0,95$, sous un champ appliqué de $|\vec{B}_a^x| = 288$ mT (a), 432 mT (b), 672 mT (c), 864 mT (d). Au delà de ~ 500 mT les signaux obtenus sont quasiment identiques, et ne présentent plus les différences importantes observables à faible champ.

En effet, pour les champs importants, $B_a^x \sim 1$ T (cf. figure 4.12), les courbes de PCD observées sont quasiment identiques quelque soit le rapport D , ce qui pointe l'absence de PND. Cette observation est consistante avec celles faites dans la littérature [35, 68], et avec la forte dépendance de la PND avec l'interaction quadrupolaire.

En effet, dans les deux mécanismes proposés, l'interaction quadrupolaire des noyaux (équivalente à un champ effectif B_Q), joue un rôle important. Or lorsque le champ appliqué dépasse B_Q , cette interaction est écrantée. L'expérience de Krebs et al. met bien en valeur l'existence d'un *champ critique*, au delà duquel la polarisation nucléaire chute brutalement. Ce champ critique (B_c) varie énormément d'une BQ à l'autre (entre 0,5 et 1 T), ce qui nous empêche d'observer une transition nette sur l'ensemble de BQ étudié ($\sim 10^4$). Cependant nous allons estimer sa valeur moyenne dans notre échantillon, grâce à l'observation de l'évolution de la dynamique du spin électronique avec le champ. Cette évolution nous permettra aussi de discriminer l'option A.

Étant donné la forte dépendance des résultats des simulations avec les paramètres utilisés, il est très difficile de reproduire les courbes expérimentales avec des simulations, de façon analogue à ce qui a été entrepris au chapitre précédant. Une première approche consiste donc à ajuster les courbes avec des expressions phénoménologiques, afin de déterminer les paramètres associés à la dynamiques du spin. Cette démarche a été entreprise sur une série de courbes obtenues pour des champs $\vec{B}_a^x \in [0; 1, 25T]$, avec l'échantillon 74K31 et une modulation σ^+/σ^- .

On ajuste d'abord les signaux obtenus avec une excitation de rapport $D = 0,5$; par une expression : $S_B(t) = A_e \cos(\omega_e t) \exp(-\frac{t}{T_e}) \exp(-\frac{t}{\tau_{rad}}) + A_h \cos(\omega_h t + \phi_h) \exp(-\frac{t}{T_h})$. La précision des ajustements nous impose l'utilisation d'un déclin exponentiel des amplitudes, contrairement au modèle présenté dans le chapitre précédant (qui justifie un amortissement gaussien de la précession de l'ensemble). Cet impératif provoque un léger écart des fonctions ajustées avec les données (lorsque les amplitudes deviennent faibles), mais s'avère indispensable afin d'ajuster précisément les fréquences de précession. La phase ϕ_h permet de prendre en compte le faible déphasage introduit dans la partie 3.4.4. Un bon accord des fonctions ajustées avec les courbes expérimentales nous permet de confirmer la valeur de $g_e = 0,3$ précédemment estimée, et de fixer les paramètres liés au trou (ω_h, T_h) pour l'ajustement des courbes $D = 0,95$. Les ajustements des courbes obtenues avec $D = 0,95$, sont présentés sur la figure 4.13, pour deux des champs appliqués.

Dans l'hypothèse de la géométrie B (champ nucléaire essentiellement suivant x), on suppose que le faible champ nucléaire suivant z joue un rôle négligeable, et on ajuste les courbes par l'expression $S_B(t)$. Dans ce cadre, la fréquence de précession ajustée ω_e nous donne une valeur du champ nucléaire créé, via : $\omega_e = \frac{\hbar}{g_e \mu_B |B_a^x + B_n^x|}$. Le résultat de ce traitement est présenté sur la figure 4.14.a, où l'on trace le champ nucléaire B_n^x ajusté en fonction du champ appliqué B_a^x . Le résultat est analogue a celui obtenu par Krebs et al. :

- En dessous d'un champ critique ~ 400 mT, le champ transverse total vu par l'électron est très faible (ce qui indique que la composante B_n^x le compense quasi-totalement).
- Au dessus de ce champ critique, on retrouve le comportement "normal" de la

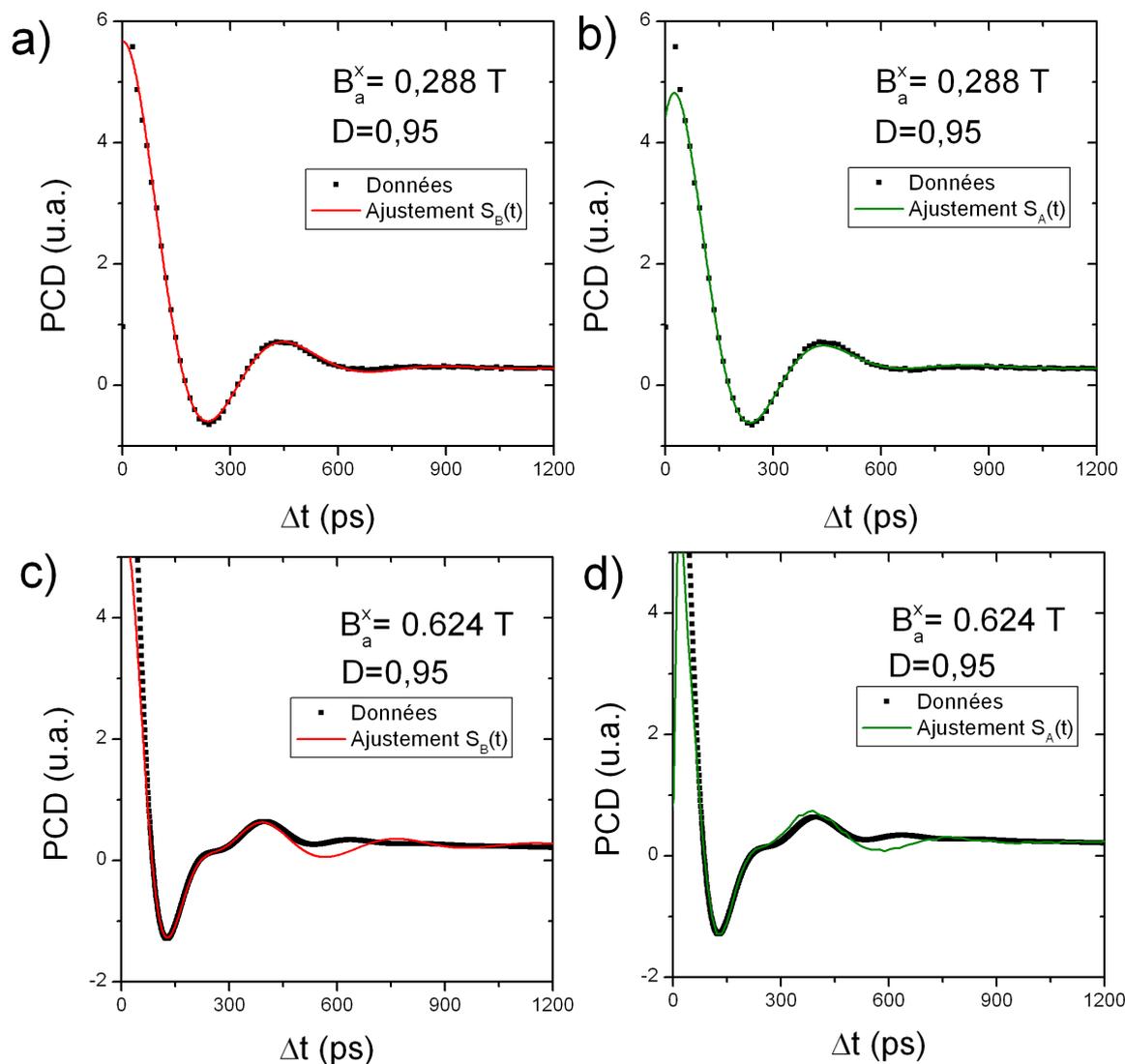


FIGURE 4.13 – Données expérimentales obtenues avec $D = 0,95$ et leur ajustement par les fonctions $S_B(t)$ et $S_A(t)$ (qui sont identiques, à la largeur du trait près), pour des champs appliqués de $0,288$ T (a et b) et $0,624$ T (c et d). Les deux expressions $S_A(t)$ et $S_B(t)$ ajustent correctement les courbes, cependant l'amortissement exponentiel ne permet pas de reproduire l'amplitude des signaux à fort champ.

précession électronique.

On remarque que le champ critique observé est proche de celui mesuré par Krebs et al. On note aussi que dans cette interprétation, il faut nécessairement que $|B_n^x| > |B_a^x|$, pour que le mécanisme de polarisation des noyaux proposé fonctionne, en prenant en compte $g_e < 0$.

On ajuste ensuite les courbes, sous l'hypothèse que la polarisation nucléaire créée respecte la géométrie A (champ nucléaire essentiellement suivant z). Dans ce cas,

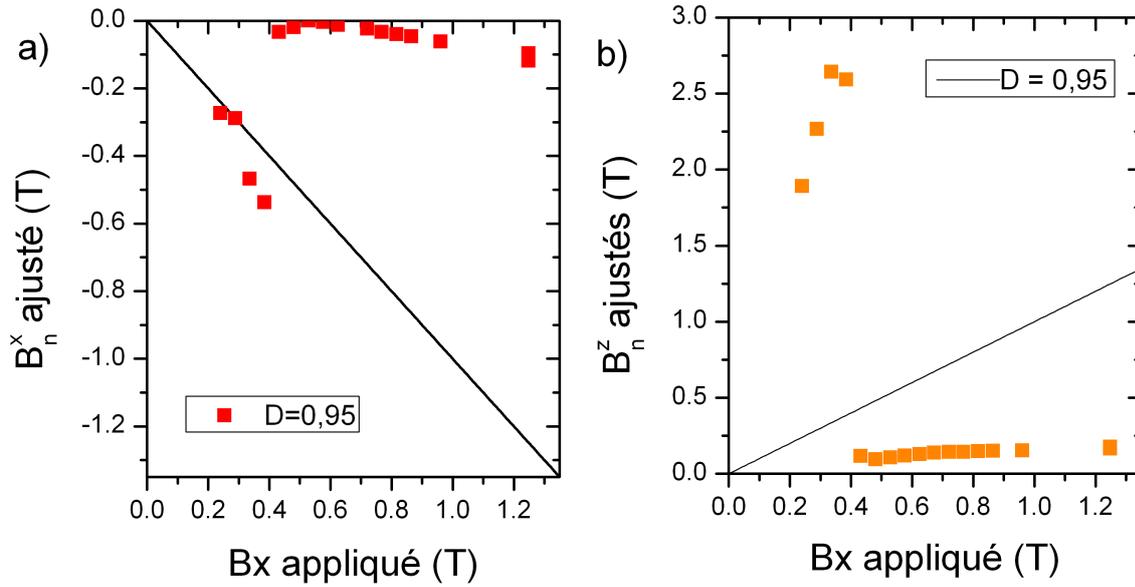


FIGURE 4.14 – a) Résultat des ajustements des données obtenues pour $D = 0,95$ pour différents champs, par la fonction $S_B(t)$ (hypothèse de la géométrie B). On représente le B_n^x ajusté. L'augmentation des valeurs à fort champ provient d'un léger écart de g_e utilisé avec la valeur de l'échantillon. b) Champ B_n^z ajusté avec la fonction $S_A(t)$ avec les mêmes données expérimentales, dans l'hypothèse de la géométrie A.

on doit utiliser une expression différente pour l'ajustement, qu'on note¹⁹ :

$$S_A(t) = A_e \left(\left[\sin^2(\alpha) + \cos^2(\alpha) \cos(\omega_e t) \exp\left(-\frac{t}{T_e}\right) \right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rad}}\right) \right) + A_h \cos(\omega_h t + \phi_h) \exp\left(-\frac{t}{T_h}\right) \quad (4.11)$$

où α est l'angle indiqué sur la figure 4.11.a. Le résultat des ajustements nous permet de calculer le champ B_n^z , qui est présenté sur la figure 4.14.b. On remarque que la faible amplitude de la précession électronique ne peut s'expliquer que si on prend en compte un champ B_n^z extrêmement important $\sim 1 - 3$ T. Une telle polarisation nucléaire est, dans nos conditions d'excitation, extrêmement improbable, ce qui constitue un contre-argument fort à l'encontre de la géométrie A proposée par Dzhioev.

En conclusion, l'évolution de l'effet de PND observé avec le champ est compatible avec la géométrie B, et invalide la géométrie A. De plus, l'observation d'un champ critique ~ 400 mT au delà duquel la PND n'est plus observable, rapprochent encore nos données des observations faites par Krebs.

Nous avons également cherché à corroborer nos mesures pompe-sonde du PCD, avec des mesures de photoluminescence. Cependant, les données obtenues par deux dispositifs différents, présentées dans l'annexe B, sont parasitées par la photoluminescence d'états excités, créés par l'excitation non résonante. Ces mesures de photoluminescence

19. Dans cette expression, on ne prend pas en compte l'anisotropie du g_e , car le champ exercé suivant z est un champ nucléaire, défini à partir de l'expression 4.2 avec la valeur du g_e transverse.

ne permettent donc pas une observation complémentaire des effets de PND obtenues par les expériences pompe-sonde. Elles rappellent la difficulté liée à l'observation d'effets fins sur les ensembles de BQ.

Dans la partie suivante, nous décrivons la mise en œuvre d'un dispositif original, afin d'obtenir une dernière information sur la polarisation nucléaire observée, concernant sa dynamique.

4.3.5 Dynamique longue de la polarisation nucléaire

Afin de mieux comprendre les mécanismes responsables de la PND observée, il convient de s'intéresser à sa dynamique temporelle, c'est à dire aux temps de *construction* (τ_c) et de *déclin* (τ_d) de la polarisation nucléaire. Il est connu que, dans les matériaux massifs, ces temps peuvent aller de la milliseconde, à plusieurs heures [1, 34, 20]. Nous aurons donc à adapter notre dispositif expérimental pour les observer.

Variation avec la fréquence de modulation

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à l'évolution de la PND avec la fréquence de modulation de l'excitation pompe. De nombreuses études (dont la notre), se servent d'une modulation σ^+/σ^- "rapide" de la polarisation d'excitation (par rapport à l'échelle de la milliseconde, c'est à dire ~ 40 kHz), pour justifier l'absence de polarisation nucléaire. Cependant cette hypothèse a récemment été remise en question dans les BQ [68]. De plus, les effets de PND observés dans nos expériences se manifestent malgré des modulations de la pompe à 200 kHz, avec des rapports D légèrement asymétriques ($D = 0,6$). Une première approche des temps mis en jeu, peut se faire grâce à l'observation de l'évolution de l'amplitude de la PND avec la fréquence de modulation (dans une démarche analogue à une étude réalisée dans notre équipe, pour mettre en évidence les temps liés à la dynamique du spin du trou [45]).

Or on observe (cf figure 4.15), une *invariance fréquentielle* de la dynamique observée pour un rapport D donné, avec une fréquence de modulation : $f_{pompe} \in [10 \text{ kHz}; 1 \text{ MHz}]$. Cette invariance nous indique que les constantes de temps de la polarisation nucléaire sont : ou bien très courtes ($\tau_{c,d} \ll 1\mu s$), ou très longues ($\tau_{c,d} \gg 1$ ms), devant les périodes de l'excitation.

A ce stade, il est important de préciser que les temps étudiés dans ces conditions seront nécessairement des temps composites de τ_c et τ_d , car les impulsions pompes sont polarisées alternativement σ^+ et σ^- . La polarisation électronique moyenne pendant la phase σ^+ , $\langle \hat{S}_e \rangle_{\sigma^+}$, sera l'opposée de celle créée pendant la phase σ^- : $\langle \hat{S}_e \rangle_{\sigma^-}$. Pour un rapport $D = 0,6$, la polarisation nucléaire sera construite (en τ_c) pendant la phase σ^+ ; pendant la phase σ^- , la polarisation nucléaire n'est pas *détruite* par des mécanismes internes à la BQ laissée dans le noir (et contenant un trou résident), mais *décons-*

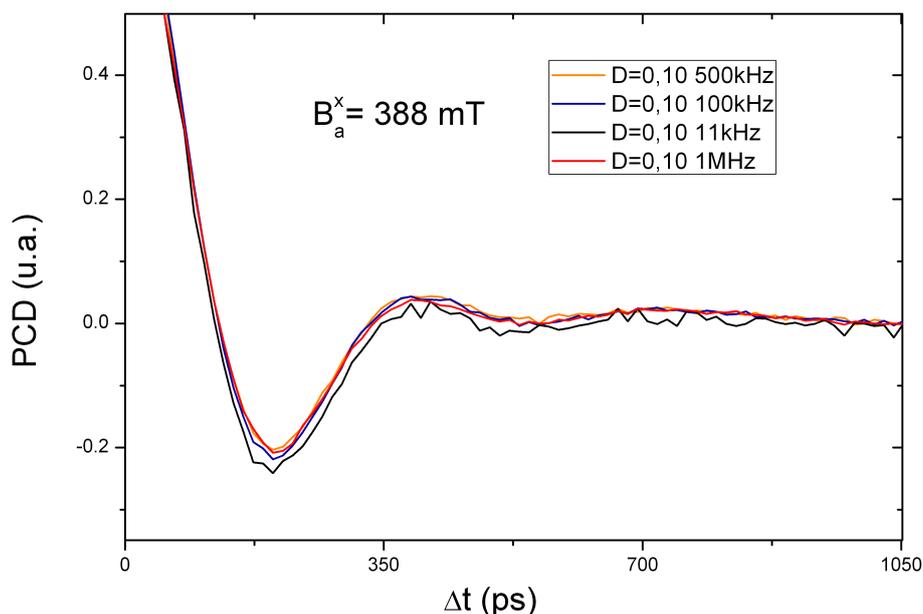


FIGURE 4.15 – Courbes de PCD obtenues pour $D = 0,1$, et avec quatre fréquences de modulations différentes. Les résultats sont indépendants de la fréquence de modulation, sur une gamme de 11 à 1000 kHz. On rappelle que l'excitation $D = 0,1$ possède une polarisation moyenne opposée à celle de $D = 0,9$, et produit donc un signal opposé, mais équivalent.

truite par la présence d'un porteur de spin $\langle \hat{S}_e \rangle_{\sigma^-}$. Ce dernier est donc à dissocier du temps τ_{decay} , de déclin de la polarisation nucléaire dans la BQ non illuminée. Enfin le phénomène observé sera le résultat de l'établissement d'un équilibre stationnaire des mécanismes se déroulant dans la phase σ^+ et la phase σ^- . Il paraît donc logique que le temps composite d'établissement de la PND soit plus long que les temps de construction précédemment mesurés dans des BQ d'InAs, $\tau_c \sim 10$ ms (mesuré par Maletinsky et al. en 2007 [87]).

Dynamique du signal en temps réel

Notre dispositif expérimental pompe-sonde est conçu pour l'étude des dynamiques à l'échelle de la pico-seconde, qu'à celle de la milli-seconde. Cependant, nous avons adapté celui-ci pour avoir accès à cette gamme temporelle. Comme présenté sur la figure 4.16, le dispositif développé utilise un obturateur mécanique, placé sur l'axe optique devant l'échantillon. Le signal enregistré est cette fois celui délivré par la détection synchrone en mode *spectroscopie*, c'est à dire le signal démodulé en temps réel, à raison de un point tout les τ_{II} (temps d'intégration du deuxième étage). On peut donc suivre l'évolution temporelle du signal (avec une résolution temporelle τ_{II}), pour un délai pompe-sonde (Δt) donné. En plaçant la ligne à retard à un délai pour lequel l'établissement d'une PND influe fortement sur le signal (typiquement à un extremum de la précession électronique ; cf. figure 4.17), l'évolution du signal va traduire l'évolution de la polarisation

nucléaire. Cette évolution étant fortement bruitée²⁰, on va l'étudier en moyennant les résultats sur plusieurs expériences ; d'où l'utilisation de l'obturateur mécanique, qui permet de reproduire l'expérience avec une période $T_{shutter} \sim 10$ s (jugée longue a posteriori par rapport aux temps étudiés).

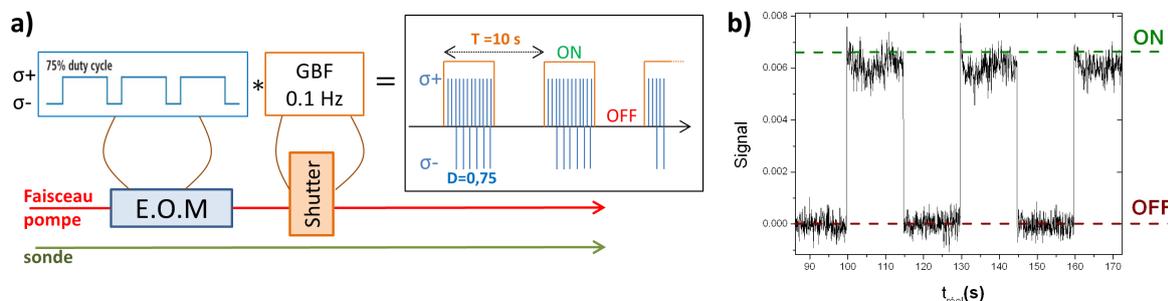


FIGURE 4.16 – a) Schéma du dispositif expérimental, et diagramme du train d'impulsions pompe produit. Pendant les périodes claires, on excite le système avec une excitation modulée avec un rapport D donné, qui va entraîner la construction d'une PND. b) Signal obtenu à la sortie du 2ème étage de démodulation de la détection synchrone, en mode spectroscopique. Lorsque l'échantillon est éclairé, le signal monte rapidement à une première valeur, puis continu d'évoluer.

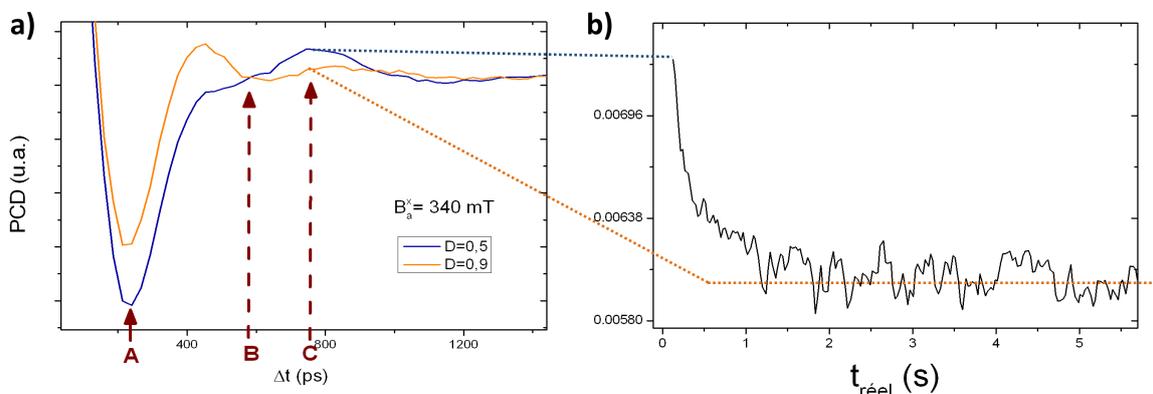


FIGURE 4.17 – a) Représentation des délais désignés "A", "B" et "C", intéressants pour l'étude de la dynamique, sur les signaux de PCD obtenus avec l'échantillon $^{74}\text{K}31$, pour une excitation $D = 0,5$ et $D = 0,9$. b) Évolution en temps réel du signal de sortie de la détection synchrone, obtenu au délai "C", et moyenné sur 15 périodes $T_{shutter}$.

Les résultats typiques d'une expérience sont présentés sur la figure 4.18. On peut tout d'abord vérifier que dans le cas d'une excitation $D = 0,5$, le signal présente un front de montée abrupte, et atteint son niveau stationnaire en ~ 50 ms. On notera que les effets capacitifs dans la détection synchrone induisent un *temps de montée* du signal

20. La réduction du temps d'intégration, en vue de l'amélioration de la résolution temporelle, induit une augmentation du bruit de la mesure.

$\sim 3\tau_{II}$. Cette dynamique propre à la détection peut parasiter le signal (et provoque une imprécision $\sim \tau_{II}$ sur la détection du front de montée²¹ qui sert au moyennage); on préfère donc supprimer les 3 premiers points après le front de montée, afin de ne pas observer cette dynamique artificielle $\lesssim 30$ ms. Cependant, sur les courbes $D = 0,9$, on observe une dynamique *longue* (~ 500 ms), qui dépasse largement ce temps d'établissement du signal. La validité de l'expérience peut être confirmée en répétant celle-ci à trois délais différents (4.18), et en observant que l'évolution du signal présente bien le signe et l'amplitude correspondant à l'atténuation de l'amplitude de la précession électronique (cf figure 4.17.a).

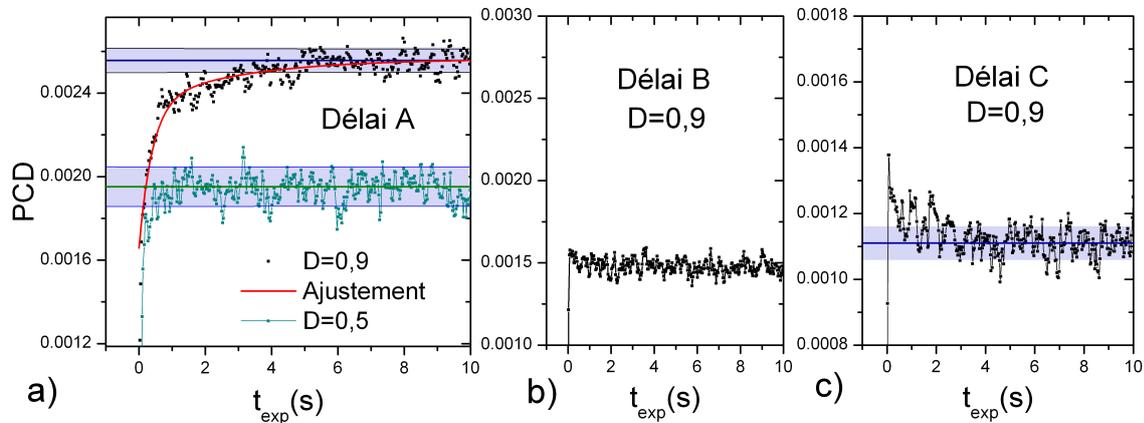


FIGURE 4.18 – a) Évolution du signal en temps réel obtenu, au délai A, pour une excitation $D = 0,9$ (noir), et $D = 0,5$ (cyan). On représente l'ajustement de la dynamique (pour $D = 0,9$) par une double exponentielle, de temps : $\tau_1 = 450 \pm 50$ ms et $\tau_2 \equiv 3000$ ms. b) Évolution du signal, pour $D = 0,9$, au délai B, point invariant avec D (cf. figure 4.17.a), le signal stationnaire est instauré immédiatement. c) Évolution du signal, au délai C, pour $D = 0,9$. Le signal présente bien une décroissance (conformément à la situation représentée sur la figure 4.17.a). Les trois expériences sont menées sous l'application d'un champ $B_a^x = 340$ mT. Les niveaux stationnaires des signaux sont représentés, avec leurs intervalles de prédiction à 80 %.

Afin de quantifier les temps caractéristiques associés à la dynamique, on procède à son ajustement par une double exponentielle. Pour un champ $B_a^x = 340$ mT et un rapport $D = 0,9$, on obtient les temps de construction : $\tau_{c,1} = 450 \pm 50$ ms et $\tau_{c,2} = 3$ s. La contribution de l'exponentielle en $\tau_{c,2}$ est indispensable pour rendre compte de la forme de la dynamique observée sur l'échantillon 74K31. Ces temps sont 50 à 500 fois plus importants que le $\tau_{buildup} = 9,4$ ms, mesuré par Maletinsky et al. en 2007, en champ longitudinal avec une BQ d'InAs dopée n (dont la polarisation nucléaire est induite par l'électron résident). Cependant, on rappelle que le τ_c mesuré est un temps composite car notre excitation est modulée, et d'autre part celle-ci est

21. Le temps d'ouverture du shutter $\lesssim 1$ ms, devient alors négligeable.

impulsionnelle (ce qui implique un taux d'occupation électronique de la BQ bien plus faible $\sim \frac{\tau_{rad}}{T_L} \approx \frac{1}{20}$). Il s'agit, à notre connaissances, des deux seules estimations des temps de construction de la PND réalisées dans les BQ d'InAs à ce jour, dans deux configurations de champ différentes²².

Bien que l'amplitude de la dynamique varie avec le rapport D (conformément aux observations précédentes), les temps de construction ne présentent pas de variations significatives (au delà de la précision de l'ajustement pour $\tau_{c,1}$, ± 50 ms). De même, nous n'avons pas repéré d'évolution de ces temps caractéristique avec le champ appliqué.

Une dernière expérience peut être menée, afin de tenter d'accéder au temps de déclin de la polarisation nucléaire, en l'absence de faisceau pompe²³ (l'échantillon est toujours soumis à un éclairage, de puissance moindre, du faisceau sonde). On répète l'expérience précédente, mais en faisant varier le temps *sombre*, de fermeture de l'obturateur (voir figure 4.19.a). On note que l'échantillon utilisé pour cette expérience est le 93P134, qui a des caractéristiques quasi identiques au 74K31, et qui présente un effet très similaire à ceux présentés précédemment, ainsi qu'une dynamique de construction de la PND identique ($\tau_c = 450$ ms).

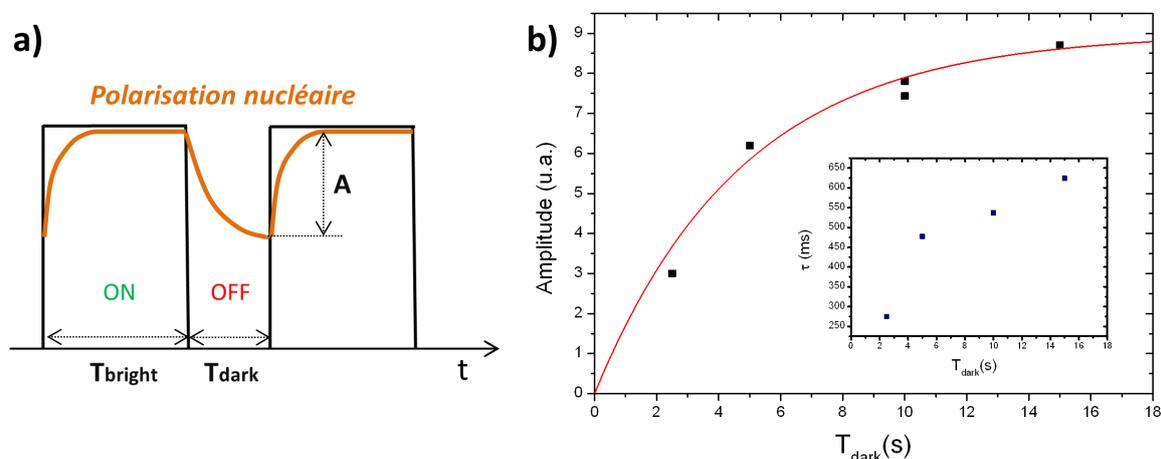


FIGURE 4.19 – a) Diagramme représentant un train d'excitation où l'on fait varier le temps sombre T_{dark} , ce qui va produire une variation de l'amplitude de l'effet (associé à la PND) observé. b) Résultat de l'expérience, menée sur l'échantillon 93P134, avec $B_a^x = 340$ mT. On observe une augmentation de l'amplitude (en valeur absolue) avec le temps sombre T_{dark} . Cette évolution est ajusté par une exponentielle, qui donne le temps caractéristique $\tau_d = 4,4$ s. En encadré : évolution du temps $\tau_{c,1}$ ajusté, avec T_{dark} . La dynamique s'accélère lorsque son amplitude est faible.

22. Voir aussi l'étude réalisée par Dou et al. en 2012 [32], sur des BQ unique d'InAs/GaAs dopées p .

23. Ce temps est difficilement accessible avec notre expérience, étant donné la nécessité d'exposer l'échantillon aux faisceaux pompe et sonde pour réaliser une mesure.

Si on suppose qu'un régime périodique s'établit pour la dynamique de la PND, et que la polarisation nucléaire est saturée pendant les temps clairs (ce qui est certainement le cas car $T_{bright} = 10s \gg \tau_{c',j}$), alors l'amplitude de la dynamique observée pendant le temps clair, dépend uniquement du temps noir, et évolue de façon exponentielle $\propto \exp(\frac{-T_{dark}}{\tau_d})$. On observe effectivement une croissance de l'amplitude de la dynamique observée avec le temps noir, qui nous permet d'ajuster la valeur $\tau_d = 4,4$ s (cf. figure 4.19). Ce temps est comparable à celui obtenu dans l'étude de Maletinsky, qui est de 2,2 s (en présence d'un champ $B_a^z \sim 1$ mT pour écranter l'interaction dipolaire). Enfin, on remarque que le temps de construction $\tau_{c',1}$ se raccourcit lorsque l'amplitude de la dynamique diminue, ce qui pourrait être une indication de la non-linéarité de la PND.

Les expériences de dynamique présentées dans cette partie nous ont permis de donner une estimation des temps d'établissement et de destruction de la polarisation nucléaire dans les BQ étudiées, dans nos conditions particulières d'excitation. La prise en compte de celles-ci (et notamment du facteur d'occupation de la BQ) peut expliquer l'écart avec les mesures faites par Maletinsky. Bien qu'on puisse observer son effet sur des échelles de temps allant de la picoseconde à la seconde, il reste compliqué d'expliquer la dynamique de la polarisation nucléaire sans avoir de modèle adapté en champ transverse. Dans ce qui suit, nous présenterons les conclusions de nos expériences, et des pistes possibles pour établir ce modèle.

Conclusion

Les expériences présentées dans ce chapitre montrent des effets spectaculaires, mais dont l'observation sur ensemble se révèle difficile, et dont la modélisation est compliquée. Cependant, plusieurs observations et conclusions peuvent être tirées de nos études.

Tout d'abord les résultats de la partie 4.3.3 montrent de façon univoque que nos conditions d'excitation, résonante et pulsée, permettent de créer une PND en champ transverse, dans le cas où la polarisation du faisceau pompe est modulée σ^+/σ^- de façon asymétrique. Cette PND inhibe la précession du spin électronique (i.e. fait diminuer son amplitude), conformément aux observations de Dzhioev et Krebs.

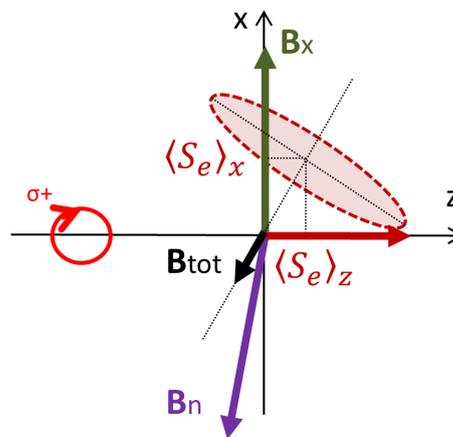
Ensuite, l'évolution des courbes observées avec le champ magnétique appliqué infirme l'hypothèse de Dzhioev. En effet, dans le cadre de sa proposition (géométrie A, forte polarisation nucléaire suivant z), la dynamique observée ferait appel à une très forte PND (~ 2 T), qui est très improbable avec l'excitation modulée utilisée. De plus, la PND se manifeste dans un gamme de champ similaire à celle étudiée par Krebs, et est inhibée au delà d'un champ critique similaire ($B_c \sim 400$ mT). Ces éléments rap-

prochent les deux expériences, et nos résultats peuvent être expliqués par la géométrie ('B') de PND proposée.

Ces observations, renforce l'hypothèse du mécanisme de PND (représenté sur la figure 4.20) suggéré par Krebs et al. (et nécessitant à l'avenir de nouvelles vérifications expérimentales) :

1. l'excitation périodique de trions polarisés $|T \uparrow\rangle$ dans la BQ, permet la création d'une polarisation nucléaire suivant z . Cette polarisation peut être stabilisée suivant z grâce aux effets quadropolaire, notamment pour les noyaux situés *au sommet* de la BQ (présentant un θ faible cf. figure 4.3.a).
2. le champ $\vec{B}_{tot} = \vec{B}_a + \vec{B}_n$ présente un angle avec l'axe x du champ appliqué, et ainsi le trion possède une polarisation $\langle \hat{S}_e^x \rangle$ non-nulle suivant x , qui est transférée aux noyaux via le couplage hyperfin et crée un champ nucléaire \vec{B}_n^x anti-parallèle au champ appliqué²⁴. La polarisation nucléaire suivant x peut, elle aussi, être stabilisée par l'interaction quadropolaire, notamment pour les noyaux situés *aux extrémités* de la BQ (présentant un $\theta \sim \frac{\pi}{2}$, cf. figure 4.3.a)
3. plus le champ nucléaire \vec{B}_n^x est important, plus la précession électronique (imposée par \vec{B}_{tot}) est ralentie. $\langle \hat{S}_e^z \rangle$ va ainsi augmenter, et faire augmenter \vec{B}_n^z avec lui. L'angle du vecteur de précession électronique augmente, et $\langle \hat{S}_e^x \rangle$ va augmenter de paire (dans la mesure où cet angle reste inférieur à 45°). Une plus forte polarisation nucléaire suivant x devient alors possible. Ce mécanisme de rétro-action serait responsable de la compensation quasi-exacte, du champ appliqué.
4. au delà d'un champ critique ($\sim 0,5$ T), la polarisation nucléaire s'effondre et le mécanisme devient inopérant. L'effondrement total de la polarisation montre que ce champ ne correspond pas à une "saturation" de la polarisation nucléaire, mais plutôt à l'inhibition soudaine d'une autre interaction (i.e. l'interaction quadropolaire), qui provoque la désaimantation totale de la BQ.

Enfin, les expériences présentées dans la partie 4.3.5, permettent de mettre en avant un temps de construction de cette PND ~ 450 ms. Ce temps, très long au regard de toutes les autres dynamiques du système, est compatible avec des taux de polarisation important, et avec le faible facteur d'occupation des BQ (dû à l'excitation pulsée). Le temps de rémanence $\sim 4,5$ s mesuré, est important à prendre en compte dans de futures expériences. Il pourrait notamment expliquer



24. Cette géométrie impose la condition $|\vec{B}_n^x| > |\vec{B}_a^x|$, sous l'hypothèse $g_e < 0$ isotrope. Dans le cas où g_e^{\parallel} et g_e^{\perp} seraient de signe opposé, cette condition est levée. FIGURE 4.20

l'écart à la courbe Hanle de la luminescence modulée σ^+/σ^- à 40 kHz observée par Krebs, dans la mesure où la PND pourrait être partiellement conservée entre deux expériences successives, alors que nos observations dans des conditions proches ne présentent pas de PND (cf. la dépendance linéaire de la fréquence de précession électronique, dans la partie 3.2.4). Ces temps "longs" méritent de nouvelles études, et justifient l'intérêt portant sur l'utilisation des spins nucléaire pour la manipulation du spin électronique [56].

Cependant nos expériences ne permettent pas de donner plus de précisions sur la polarisation nucléaire étudiée. En effet, l'étude d'un ensemble de BQ pose plusieurs problèmes.

Le premier étant la proximité des valeurs des facteurs de Landé g_e et g_h de notre échantillon, qui rend difficile l'observation de la modification de la dynamique du spin électronique. De plus, la *dimensionnalité* de notre expériences limite l'analyse, car l'observation de la projection du spin suivant z uniquement, ne permet pas la résolution de la dynamique avec certitude.

En outre, l'inhomogénéité de PND de l'ensemble des BQ est impossible à quantifier. D'une part, le champ critique est certainement très dispersé au sein de l'échantillon, mais d'autre part la direction, et la magnitude du champ nucléaire formé d'une BQ à l'autre pourrait varier fortement, ce qui provoquerait un déphasage très rapide des précessions électroniques (un effet qui pourrait même être dominant dans l'inhibition de celle-ci).

Cette même raison rend impossible la détermination de l'importance relative de B_n^z et B_n^x ; alors que la composante B_n^z , bien que faible, est indispensable dans le mécanisme de polarisation proposé.

Troisième point, les expériences étudiant un ensemble ne permettent pas l'observation d'effets non-linéaires ou de bi-stabilités, pourtant importants dans les expériences concurrentes. Il faut ajouter que nos expériences sont résonantes et ne permettent pas de faire appel à un temps de corrélation du spin τ_c court²⁵, pour expliquer les mécanismes flip-flop (comme Krebs en champ longitudinal cf. partie 4.1.1, ou Urbaszek en champ transverse [101]), a priori critiques dans l'accumulation de la PND. Enfin les expériences de photoluminescence (qui seraient utiles pour rattacher nos résultats aux expériences de la bibliographie) ne sont pas concluantes, et ne permettent pas de confirmer la robustesse des effets observés à une excitation non-résonante.

Si nos résultats peuvent être expliqués par le mécanisme de polarisation nu-

25. Dans nos expériences $\tau_c \sim \tau_{rad} = 700$ ps, alors que Krebs et Urbaszek font appel à des $\tau_c \sim 50$ ps pour expliquer leurs expériences.

cléaire proposé par Krebs et al., il ne permettent cependant pas d'apporter plus de détails (autres que ses temps caractéristiques de construction), sur sa configuration. Des études ultérieures devraient être réalisées à l'échelle d'une BQ unique, afin de pouvoir confronter les signaux pompe-sonde, aux mesures de l'écart Overhauser (permises par la μ -photoluminescence). Le signal pompe-sonde obtenu avec une BQ unique (et donc débarrassé de toute contribution inhomogène), permettrait une résolution inégalée de la dynamique temporelle du trion, et permettrait de mettre à jour le transfert de la polarisation de l'électron aux noyaux. De plus, ces expériences pourraient être réalisées en champ oblique²⁶ pour élucider l'importance relative des composantes B_n^x et B_n^z , ou bien être couplées à des expériences de résonance du spin nucléaire [86] (pour résoudre leurs polarisations au sein d'une BQ).

Afin de poursuivre ces études, la réalisation d'un dispositif pompe-sonde sensible à l'échelle d'une BQ unique a été entreprise dans cette thèse, et fait l'objet du chapitre suivant.

26. Des expériences ont été menés en champ oblique durant cette thèse, mais présentent (même pour des inclinaisons faibles) des effets trop importants pour être compris dans le cadre des modèles présentés dans ce chapitre.

Chapitre 5

Expérience pompe sonde avec détection hétérodyne.

On souhaite maintenant avoir une meilleure résolution spatiale afin d'adresser un nombre plus réduit de BQ. Ainsi on réduit de 1000 à 10000 fois le nombre de BQ adressées et on réduit d'un facteur comparable les puissance laser incidentes, et donc l'intensité du signal analysé. Cependant on souhaite garder un rapport signal/bruit comparable à celui de l'expérience précédente. C'est pourquoi on va introduire un troisième faisceau, dit *référence*, qui va permettre d'amplifier la variation de la polarisation sonde à l'origine du signal, sans pour autant interagir avec l'échantillon. C'est le principe de la détection hétérodyne, qui sera présentée dans cette section.

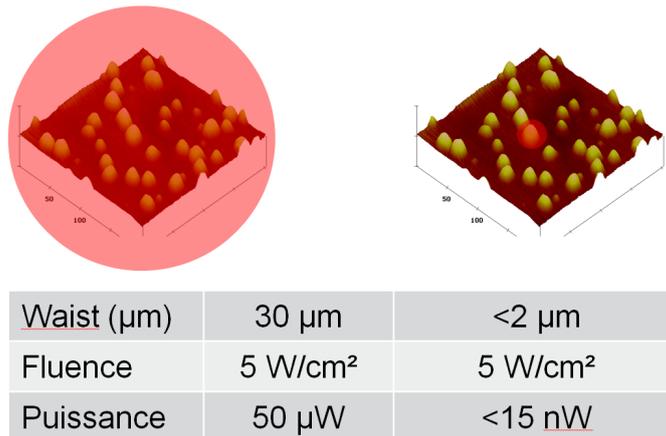


FIGURE 5.1 – Figure illustrant la diminution drastique des puissances de faisceau sonde utilisées lors de la réduction du diamètre de la tache laser, à fluence constante. NB : la taille et densité des BQ n'est pas à la même échelle que la tache.

Dans cette section, nous présenterons l'expérience pompe-sonde à détection hétérodyne développée durant cette thèse. Nous insisterons particulièrement sur les dif-

férences de ce montage par rapport au montage à détection homodyne présentée au chapitre 2. Nous présenterons ensuite les avantages qu'apporte ce type de détection pour l'amplification du signal et l'analyse de la polarisation. Enfin, nous décrirons les échantillons utilisés et les conditions expérimentales standards.

5.1 Dispositif expérimental

L'expérience présentée ici reprend le même principe que celle présentée dans le chapitre 2 : on focalise sur une même région de l'échantillon étudié une impulsion laser pompe et une impulsion sonde, avec des polarisations et un décalage temporel contrôlés. On analyse ensuite l'intensité et la polarisation de la sonde, qui est cette fois réfléchi (et non transmise) sur l'échantillon. Cependant dans cette expérience, la sonde est amplifiée, grâce à son interférence avec un faisceau référence.

Tout d'abord, nous présentons les trajets optiques des trois faisceaux utilisés dans cette expérience. Le laser utilisé est aussi un laser Titane Saphire pulsé, de fabrication SpectraPhysics (*Tsunami*). Il fonctionne en régime impulsionnel grâce à un dispositif passif (et non actif comme sur le *Mira*), et il est pompé optiquement par un laser de 8,5 W. Bien que son mode impulsionnel soit moins stable, il présente cependant l'avantage d'avoir une divergence de faisceau quasi-nulle. Le laser fonctionne dans les mêmes gammes spectrales que le *Mira*, et présente des durées d'impulsion comparables (2 ps). Le faisceau issu de ce laser est cette fois séparé en trois faisceaux distincts (voir figure 5.2).

Le **faisceau sonde** va être focalisée sur un modulateur acousto-optique (AOM 1), dont le fonctionnement est détaillé dans le chapitre 2. Comme mentionné précédemment, l'AOM va introduire un décalage fréquentiel (*blueshift*), de la fréquence optique sur le premier ordre diffracté. On re-collimate ensuite le faisceau d'ordre 1 et il traverse un dispositif de filtrage (DF)¹. Le faisceau sonde traverse ensuite un polariseur linéaire (P 1, perpendiculaire ou parallèle à la surface de la table optique), puis un cube "non polarisant" (CNP 1), et finalement est réfléchi sur un deuxième cube (CNP 2), avant d'entrer dans l'objectif. L'objectif est de marque Mitutuyo, présente une forte ouverture numérique (ON=0,4), et ainsi un grossissement $\times 40$, pour une distance de travail de 17 mm. L'objectif est conçu afin de ne pas altérer la polarisation (pour nos longueurs d'onde de travail). Le diamètre de la tache laser focalisée, à $\lambda = 900$ nm, est de l'ordre de $2\mu\text{m}$.

1. Le dispositif de filtrage utilisé est le même que dans le dispositif précédent. Le filtrage n'est ici pas imposé par la divergence du laser, mais c'est un choix, qui permet d'aplanir le front d'onde du faisceau (ce qui peut avoir un intérêt pour la détection interférentielle).

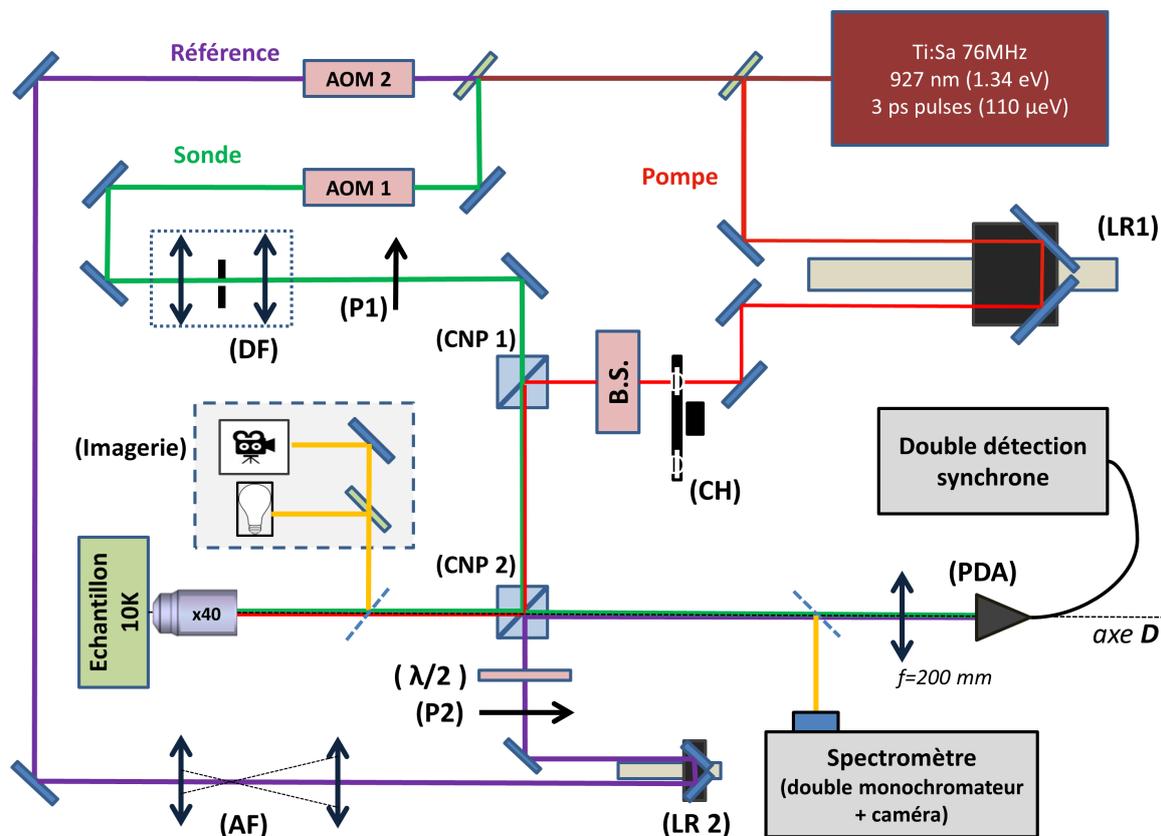


FIGURE 5.2 – Le faisceau laser est divisé en trois faisceaux. Le faisceau pompe (en rouge) est réfléchi sur une ligne à retard (LR1), passe à travers un chopper (CH), et un compensateur Babinet-Soleil (BS), avant d'être réfléchi sur le premier cube non polarisant (CNP1) et puis le deuxième (CNP2), et de rentrer dans l'objectif. Le faisceau sonde (en vert), traverse un modulateur acousto-optique (AOM1), puis un dispositif de filtrage (DF), et un polariseur (P1). Il traverse ensuite CNP1 et est réfléchi sur CNP2, afin de rentrer dans l'objectif superposé spatialement avec la pompe. Sa réflexion à travers l'objectif définit un axe D. Enfin le faisceau référence (en violet) traverse un (AOM2), puis un agrandisseur de faisceau (AF), avant d'être réfléchi sur une petite ligne à retard (LR2). Puis il traverse un polariseur (P2) et une lame ($\lambda/2$) avant d'être réfléchi sur (CNP2). Cette réflexion est superposée avec l'axe D de réflexion de la sonde, ce qui permet aux deux faisceaux d'interférer sur la photo-diode à avalanche (PDA), sur laquelle ils sont focalisés par une lentille de focale $f = 200$ mm. La PDA est reliée à la détection synchrone qui permet l'acquisition du signal. On représente aussi sur ce schéma le placement des système d'imagerie et de collection de la photoluminescence de l'expérience (en jaune).

Le **faisceau pompe** est envoyé à travers une ligne à retard, afin d'introduire un décalage temporel entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde. Nous utilisons cette fois une ligne à retard plus courte (250 mm) que dans l'expérience précédente, d'autant plus que le faisceau ne fera qu'un aller-retour à travers celle-ci. Le faisceau pompe passe ensuite à travers un modulateur mécanique (Chopper, CH), puis un compensateur

Babinet-Soleil (BS), qui permet de contrôler de façon statique son ellipticité. Grâce à sa réflexion sur le premier cube, le faisceau est superposé avec le faisceau sonde, et va venir traverser l'objectif après sa réflexion sur le deuxième cube².

Le **dernier faisceau**, appelé *référence* (ou *clock* en anglais), va lui aussi être focalisé sur un modulateur acousto-optique (AOM 2), dont on récupère la diffraction du premier ordre (dont la fréquence optique aura subi un *blueshift*). Il va ensuite parcourir un trajet optique de longueur comparable à celui de la sonde, avant d'entrer dans une petite ligne à retard (LR 2, de 25 mm d'extension). Cette ligne à retard nous permet d'ajuster précisément le trajet optique de la référence afin qu'il soit identique à celui de la sonde réfléchi sur l'échantillon, lors de leur superposition sur le cube numéro 2. Avant d'entrer dans le cube, ce faisceau traverse une polariseur Glan-Laser (P2, avec un taux d'extinction $\sim 10^{-5}$), et une lame achromatique demi-onde ($\lambda/2$), qui permettent de réfléchir le faisceau avec les polarisations appropriées (selon les axes du cube).

On s'intéresse ensuite à *la détection*, qui est faite le long de l'axe noté D sur le schéma. Comme expliqué précédemment, on analyse le faisceau sonde réfléchi par l'échantillon³. Il est donc important que l'orientation du support du cryostat (et donc de l'échantillon) soit réglée de façon à réfléchir la sonde suivant l'axe D . Deux miroirs (non représentés sur le schéma), permettent ensuite de superposer la référence avec la sonde réfléchi sur l'axe D . Le détecteur est volontairement placé à une distance importante ($\sim 1,5\text{m}$), afin de nous donner un long bras de levier et donc une bonne sensibilité du réglage.

Enfin une lentille achromatique de focale 200 mm, va focaliser conjointement sonde et référence sur la surface active du détecteur (de 1 mm de diamètre). Le détecteur utilisé est une photo-diode à avalanche (*PDA*) de marque Hamamatsu (d'une sensibilité de $1,25 \cdot 10^7 \text{V/W}$). La tension mesurée est ensuite envoyée vers une double détection synchrone, qui va la filtrer grâce aux signaux *TTL* adaptés (le premier à la fréquence hétérodyne, et le deuxième à la fréquence de modulation du Chopper). Le principe de cette détection est détaillé dans la partie suivante.

2. Le diamètre de la pupille d'entrée de l'objectif (5 mm) et l'épaisseur de celui-ci (10 cm), nous imposent la superposition des faisceaux, et l'utilisation de cubes vendus comme "non polarisant". Cependant, l'expérimentateur remarque rapidement que ceux-ci détériorent drastiquement (notamment en réflexion) une polarisation qui n'est pas linéaire, et orientée selon les arêtes du cube. C'est pourquoi nous utiliserons uniquement des polarisations de la sonde (et de la référence) parallèles ou perpendiculaires à la surface de la table (et a fortiori aux axes du cube). Cependant, nous allons avoir besoin pour notre étude de polarisations différentes pour la pompe. D'où l'utilisation d'un compensateur Babinet-Soleil, dont on oriente les axes propre à 45° des axes du cube. Après caractérisation de la réflexion sur les cubes, on va pouvoir donner au faisceau pompe une ellipticité qui va compenser parfaitement celle introduite par les deux réflexions successives. Le faisceau va alors entrer elliptique dans le premier cube, puis sort du deuxième cube, et rentre dans l'objectif avec une polarisation à 45° de la table (avec un contraste de polarisation supérieur à 100).

3. On note que cette réflexion sera de puissance moindre par rapport à celle incidente, du fait de l'absorption de l'objectif ($\sim 2 \times 30\%$) et de l'échantillon.

Photoluminescence et imagerie

Il convient d'ajouter que cette expérience est couplée à deux autres dispositifs. Tout d'abord un montage de spectroscopie, qui permet via l'addition d'un miroir sur l'axe D , de recueillir la photoluminescence de l'échantillon, et de la renvoyer vers un double monochromateur *ActonSP2750* et une caméra *Pylon*. L'échantillon est dans ce cas excité à travers l'objectif, par un laser rouge à 635 nm (soit au dessus du gap du GaAs), non représenté sur le schéma. Le montage à double monochromateur, permet une excellente résolution (0.00745 nm/pixel), et la caméra présente une très bonne sensibilité (efficacité quantique $\sim 90\%$).

On peut enfin adjoindre un dispositif d'imagerie, grâce à une lame semi-réfléchissante amovible. Dans ce cas, l'échantillon est éclairé par une source blanche fibrée, focalisée afin d'éclairer dans des conditions dites de Köhler. Une lentille de diamètre 2 pouces et de focale 200 mm, permet d'obtenir une image sur notre caméra, avec un grossissement $G = 50$.

Nous en venons maintenant à l'explication détaillée de la détection hétérodyne.

5.2 Détection hétérodyne, caractéristiques et avantages

Comme on l'a mentionné précédemment, les AOM 1 et 2 provoquent un *blue-shift* de la fréquence optique du faisceau diffracté à l'ordre +1 à une fréquence $f_L + f_a$ (où f_L est la fréquence optique du laser)⁴. Ce décalage est dû à l'effet Doppler, lors de la réfraction de l'onde optique, sur le réseau d'indice constitué par une onde acoustique progressive (l'onde qui va être porteuse de la fréquence de modulation de l'AOM) de fréquence f_a . Or on peut contrôler, pour chaque AOM, la fréquence de cette onde porteuse. Ainsi on va faire en sorte d'introduire un décalage fréquentiel $f_1 = 110$ MHz sur la sonde, et $f_2 = 112$ MHz sur la référence. On note que ces décalages sont inférieurs par plusieurs ordres de grandeur à la largeur spectrale des cavités utilisées dans ces expériences, et ne provoquent donc aucune différence dans l'absorption de la sonde par rapport à celle de la pompe. De plus, ce décalage est aussi négligeable au vu des largeurs de raies d'absorption des BQ; on peut donc considérer que pompe et sonde vont interagir, à la résonance, avec les mêmes BQ.

Après son interaction avec l'échantillon, la sonde est réfléchiée selon l'axe D , sur lequel elle est confondue (alignée et superposée) avec la référence. De plus, à la sonde réfléchiée s'ajoute l'émission stimulée des BQ ($\vec{E}_{BQ}(t)$), qui a la même direction. Ces

4. L'ordre -1 aura un *redshift* et une fréquence optique $f_L - f_a$

faisceaux étant bien collimatés, le champ total au niveau du détecteur va s'écrire :

$$\vec{E}_{tot} = \left(\vec{E}_{BQ}(t) + \vec{E}_{sonde}(t) \right) e^{i(\omega_L + \omega_1)t} + \vec{E}_{ref}(t) e^{i(\omega_L + \omega_2)t} + c.c. \quad (5.1)$$

où la variation temporelle de $\vec{E}_i(t)$ permet de prendre en compte l'enveloppe temporelle des impulsions. Lorsque l'arrivée des impulsions sonde et référence coïncide dans le temps, comme attendu, leur décalage fréquentiel va provoquer une modulation de l'intensité vue par le détecteur aux pulsations $(2\omega_L + \omega_1 + \omega_2)$ et $|\omega_1 - \omega_2|$. Sous l'hypothèse d'ondes planes (raisonnable vu la longue focale de la lentille de collection), l'intensité vue par le détecteur va s'écrire :

$$\begin{aligned} & \left\langle \left(\vec{E}_{BQ}(t) + \vec{E}_{sonde}(t) \right) e^{i(\omega_L + \omega_1)t} + \vec{E}_{ref}(t) e^{i(\omega_L + \omega_2)t} \right\rangle \times c.c. \quad (5.2) \\ & \approx \langle (\vec{E}_{sonde}(t))^2 \rangle + \langle (\vec{E}_{ref}(t))^2 \rangle \\ & + 2 \langle \vec{E}_{sonde}(t) \cdot \vec{E}_{ref}(t) \rangle \cos([\omega_1 - \omega_2]t) + 2 \langle \vec{E}_{BQ}(t) \cdot \vec{E}_{ref}(t) \rangle \cos([\omega_1 - \omega_2]t) \end{aligned}$$

où $\langle . \rangle$ désigne le moyennage dans le temps exercé par le détecteur. Par souci de simplicité, on omet ici tous les termes dont la fréquence d'oscillation est $\sim 2\omega^5$, et ceux dont l'amplitude est $o(E_{BQ}(t))$, sous la condition : $E_{ref} > E_{sonde} > E_{BQ}$ (typiquement $P_{ref} = 5 \mu\text{W}, P_{sonde} = 0,1 \mu\text{W}, P_{BQ} = 10 \text{ nW}$).

Ce signal est envoyé vers le premier étage de la détection synchrone, où il est démodulé à $f_I = |f_1 - f_2|$. Cette démodulation est possible grâce à un signal de référence généré par un boîtier réalisé dans le laboratoire par Francis Breton, qui multiplie les tensions radio-fréquences d'alimentation des AOM pour obtenir leur différence f_I . Ce premier étage de démodulation nous permet d'éliminer tous les termes de l'équation (5.2), sauf les deux derniers. Après une amplification analogique de l'amplitude du signal par un facteur 100, on démodule une deuxième fois le signal, à la fréquence $f_{II} = f_{chopper} = 1,7 \text{ kHz}$. Or seul le champ $\vec{E}_{BQ}(t)$ émis par les BQ est modulé à la fréquence d'excitation f_{II} , et est conservé après démodulation à la fréquence f_{II} . Nous reviendrons par la suite sur la dépendance exacte de \vec{E}_{BQ} et donc du signal, avec le système étudié.

5.2.1 Atouts de la détection hétérodyne

La détection par interférence hétérodyne présente plusieurs avantages majeurs :

- L'amplification optique du champ émit par les BQ. Il est raisonnable d'estimer que la luminescence émise par les BQ a une puissance d'environ 10 nW.

5. En effet, la limite de la bande passante (à -3 dB) de l'APD est de 10 MHz, ainsi $\langle \vec{E}_i(t) e^{i2\omega t} \rangle = 0$. De plus, on précise dès maintenant que le taux de répétition du laser, est bien plus rapide que cette fréquence de coupure. Donc, les termes $\langle (\vec{E}_i)^2 \rangle$, seront essentiellement constants dans le temps, malgré une modulation de très faible amplitude qui subsiste à 76 MHz.

- Ainsi, le dernier terme de l'équation (5.2) (contenant le signal qui nous intéresse), présente une amplitude d'un facteur $\sqrt{P_{ref}/P_{BQ}} \sim 25$ fois supérieure au terme $\langle (\vec{E}_{BQ}(t))^2 \rangle$ analysé par l'approche homodyne. Ce facteur d'amplification va être limité par la puissance de la référence que peut supporter le détecteur. En effet, il faut éviter que la puissance totale vue par le détecteur (dominée par le terme $\langle (\vec{E}_{ref}(t))^2 \rangle$) dépasse le seuil de saturation du détecteur, d'où la condition : $P_{ref} \leq 5\mu\text{W}$.
- L'analyse de la polarisation du champ émit. Le terme contenant le signal a pour amplitude : $\langle \vec{E}_{BQ}(t) \cdot \vec{E}_{ref}(t) \rangle$. Or, comme on le verra par la suite, le champ émis par les BQ et stimulé par la sonde va présenter une composante polarisée parallèlement à la sonde, et peut présenter une composante polarisée orthogonalement. Le choix de l'orientation de la référence va nous permettre d'amplifier indépendamment chacun de ces champs. Nous reviendrons de façon plus détaillée sur ces deux configurations.
 - La bonne réjection du faisceau pompe. La haute fréquence du signal de l'interférence optique, $f_I = 2\text{MHz}$ ⁶, permet une bonne réjection des signaux à basse fréquence et des autres champs détectés, et notamment du faisceau pompe. En effet, la configuration expérimentale fait que la réflexion du faisceau pompe va elle aussi arriver sur le détecteur⁷, modulée à la fréquence f_{II} . Cependant, la condition $f_I \gg f_{II}$ va permettre une très bonne réjection du faisceau pompe au premier étage de démodulation.
 - La résolution spatiale peut être supérieure à celle fixée par la surface du faisceau sonde focalisé sur l'échantillon. En effet, lorsqu'on focalise sonde et référence sur le détecteur, la taille du *waist* de chaque faisceau va suivre la relation $w_0 = \frac{f\lambda}{D}$ où D est le diamètre d'entrée du faisceau dans la lentille. Ainsi, en augmentant le diamètre d'entrée du faisceau référence, son *waist* sur le détecteur va être plus petit que celui de la sonde. On va ainsi pouvoir faire interférer la référence avec la partie centrale de la tache sonde, qui correspond aux vecteurs \vec{k} ayant l'incidence la plus faible sur l'échantillon. En amplifiant seulement une partie de la sonde, on va pouvoir dépasser la limite de résolution spatiale imposée par la taille de la tache du faisceau sonde focalisé sur l'échantillon.
 - Enfin, le fait d'utiliser un seul détecteur (et non deux comme pour une dé-

6. On choisit un décalage fréquentiel de 2 MHz, car il s'agit de la limite haute de la bande-passante de notre détection synchrone

7. Cette contribution a été omise dans l'expression (5.2) car elle ne contribue pas aux interférences, du fait de son décalage temporel, et du décalage fréquentiel de ω_1 ou ω_2 trop important pour être détecté.

tection homodyne) permet de réduire le bruit provenant de la détection d'un facteur $\sqrt{2}$, ainsi que de se débarrasser de certains désagréments (comme l'équilibrage des gains des deux détecteurs).

Comme mentionné précédemment, le signal d'interférence détecté par la PDA, va être analysé à la fréquence hétérodyne $f_I = \frac{\omega_1 - \omega_2}{2\pi} = 2$ MHz. Cette démodulation va nous permettre d'obtenir les deux derniers termes de l'équation (5.2) :

$$2\langle \vec{E}_{sonde}(t) \cdot \vec{E}_{ref}(t) \rangle \cos([\omega_1 - \omega_2]t) + 2\langle \vec{E}_{BQ}(t) \cdot \vec{E}_{ref}(t) \rangle \cos([\omega_1 - \omega_2]t) \quad (5.3)$$

or ceux-ci ne seront nuls que si le recouvrement temporel des impulsions sonde et référence est non-nul, et si leurs polarisations sont appropriées. Nous allons présenter rapidement l'influence de ces deux facteurs sur le signal analysé.

5.2.2 Autocorrélation des impulsions

On analyse tout d'abord le signal obtenu lors de la réflexion de la sonde sur un miroir, lorsque la référence est co-polarisée à la sonde. La courbe 5.3, présente le signal analysé à la fréquence $f_I = 2$ MHz, pour différents déplacements de la ligne à retard de la référence (LR 2).

Le signal présenté est donc associé au terme $S_I = \langle \vec{E}_{sonde}^{env}(t) \cdot \vec{E}_{ref}^{env}(t) \rangle$ de l'équation (5.3). Ce signal est ainsi proportionnel au produit des enveloppes des impulsions pompe et sonde au moment t où elles atteignent le détecteur. Si on définit comme $t = 0$ le moment où la sonde (de trajet fixe) atteint son amplitude maximale sur le détecteur, alors la ligne à retard LR2 nous permet de fixer le délai δt entre l'arrivée des deux impulsions sonde et référence. L'intégration dans le temps du détecteur va nous donner le signal :

$$S_I(\delta t) = \frac{1}{T_L} \int_{-\frac{T_L}{2}}^{+\frac{T_L}{2}} \vec{E}_{sonde}^{env}(t') \vec{E}_{ref}^{env}(t' + \delta t) dt' \quad (5.4)$$

Ce signal est la corrélation des deux enveloppes des champs. On considère que l'enveloppe de chacune de ces deux impulsions est une lorentzienne de largeur caractéristique 2 ps. Alors S_I est l'auto-corrélation de cette enveloppe, et doit être une lorentzienne de largeur 2 ps.

Le signal $S_I(\delta t)$ obtenu est proche d'un profil lorentzien, mais il présente des lobes, qui sont certainement dus à des déformations du profil temporel des impulsions. Ces déformations pourraient être accentuées lors de la réflexion sur un échantillon, à cause des déformations du front d'onde lors de celle-ci.

Cependant, la courbe $S_I(\delta t)$ nous permet de placer la ligne à retard (LR 2) de façon à avoir un retard nul ($\delta t = 0$), et ainsi une amplitude des interférences hétérodyne maximale (qui sera analysé à la fréquence f_{II} ⁸ pour obtenir le signal).

8. On suppose ici, que le champ émit par les BQ, \vec{E}_{BQ} ne sera pas décalé temporellement

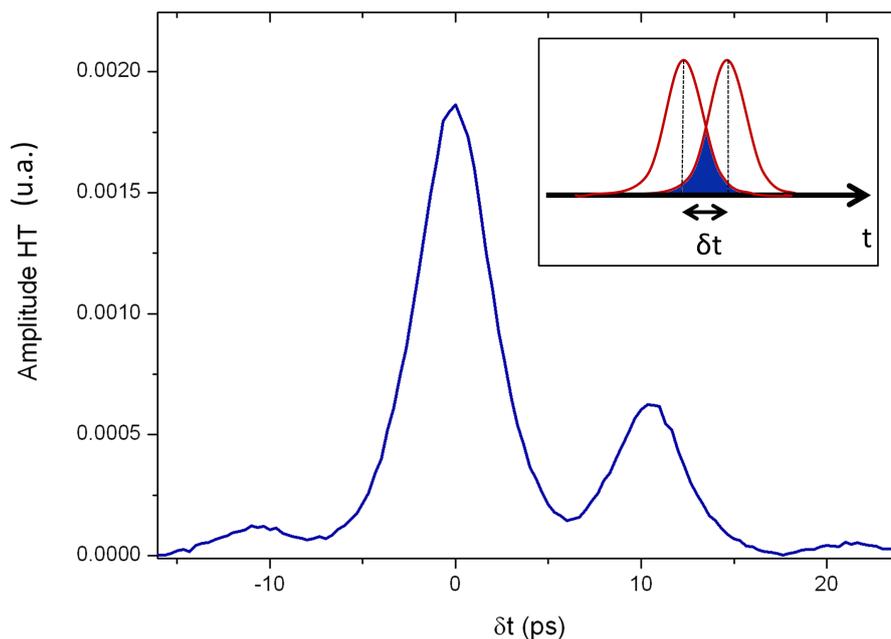


FIGURE 5.3 – Évolution du signal de corrélation des faisceau sonde et référence S_I , avec le retard δt entre leurs impulsions. Le signal obtenu est proportionnel à la corrélation en champ des impulsions sonde et référence, qui évolue avec leur recouvrement temporel (schématisé dans l'encadré).

5.2.3 Analyse de la polarisation

D'autre part, le signal S_I est proportionnel au produit scalaire des vecteurs de polarisation $\vec{u}_{sonde} \cdot \vec{u}_{ref} = \cos(\gamma)$, où γ est l'angle entre ces deux vecteurs. S_I est proportionnel à l'amplitude démodulée à la fréquence f_I . Ainsi, $S_I \propto |\cos(\gamma)|$. C'est ce que nous pouvons voir sur la figure 5.4.

L'évolution obtenue nous permet cependant d'évaluer le contraste de polarisation linéaire de la référence, qui reste >100 malgré la réflexion sur le cube (CNP2). Cette courbe permet aussi de visualiser les points de fonctionnement R ($\gamma = 0[\pi]$) et K ($\gamma = \pi/2$).

Le point de fonctionnement R va nous permettre d'amplifier au maximum le champ émis par l'échantillon parallèlement à la polarisation de la sonde. Cette configuration s'apparente à l'analyse faite dans les expériences de réflectivité différentielle.

Le point de fonctionnement K va nous permettre d'amplifier au maximum le champ émis par l'échantillon perpendiculairement à la polarisation de la sonde. Cette configuration s'apparente à l'analyse faite dans les expériences d'effet Kerr (pour des BQ dopées), car on va ainsi pouvoir amplifier la rotation de la polarisation sonde due à l'aimantation de l'échantillon.

par rapport au champ sonde. Cependant, certains résultats étonnants remettent en question cette hypothèse, lorsque l'échantillon présente une cavité.

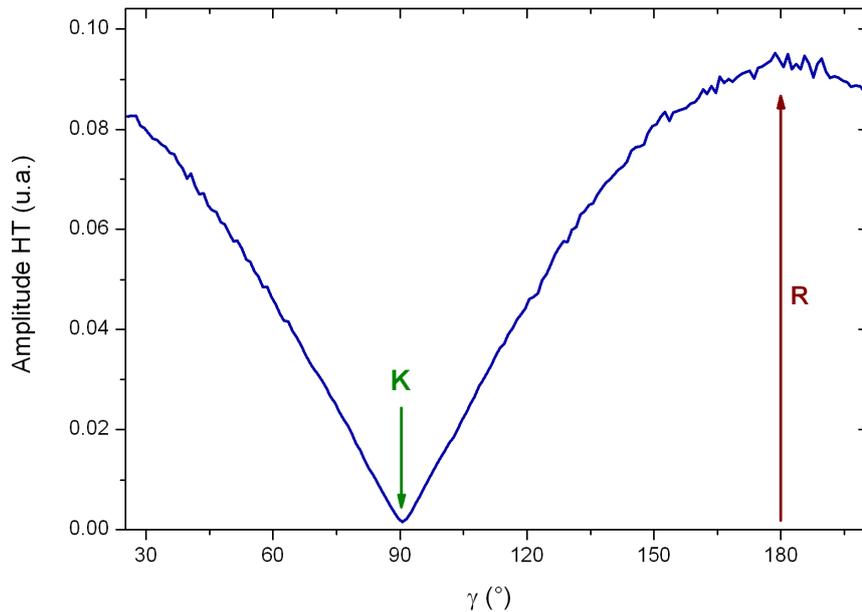


FIGURE 5.4 – Evolution du signal démodulé S_I , avec l'angle γ entre les vecteurs de polarisation de la sonde et de la référence, lorsque leur retard temporel est fixé à $\delta t = 0$. La courbe est bien ajustée proportionnellement à $|\cos \gamma|$. Elle permet d'identifier les deux points de fonctionnement utiles : R et K, représentant respectivement $\gamma = 0$ et $\gamma = \frac{\pi}{2}$.

Ces deux configurations d'analyse seront employées dans le chapitre suivant, afin d'amplifier le champ émit par les BQ co-polarisé à la sonde (section 6.2), et contra-polarisé à celle-ci (section 6.3).

5.3 Conditions expérimentales et échantillons

Nous présentons ici rapidement le dispositif cryogénique permettant le contrôle des température et l'application d'un champ magnétique longitudinal, ainsi que les caractéristiques des échantillons utilisés.

Dispositif cryogénique

Les échantillons sont cette fois collés (avec de la laque d'argent) sur le doigt froid d'un cryostat à circulation d'He, de marque Oxford (*HighRes II*). Ces cryostats permettent d'obtenir des températures sur le doigt froid inférieures à 4K (par cryo-pompage). Cependant à cause du rayonnement à travers les fenêtres et des défauts de thermalisation, nous estimons que la température de l'échantillon est de $T \approx 10$ K⁹.

9. Le laser étant à une énergie inférieure au gap du GaAs, il n'est pas absorbé par celui-ci et ne provoque aucun échauffement.

Application du champ magnétique

Nos études requièrent l'application de champs magnétiques, difficiles à mettre en place dans les cryostats à circulation à cause du faible espace disponible. La solution mise en œuvre dans notre équipe (grâce au soutien technique précieux de Mathieu Bernard), consiste à usiner les portes-échantillons afin de pouvoir insérer des aimants permanents à proximité des échantillons étudiés.

Pour les champs Faraday, l'usinage d'un porte échantillon creusé, et d'une nouvelle face arrière pour le cryostat ont permis d'installer une *tirette* (cf. figure 5.5.a), montée sur une platine micro-contrôle, permettant de faire varier continument la distance entre cinq aimants et le porte échantillon, et donc le champ B_z entre 5 et 400 mT (cf figure 5.5).

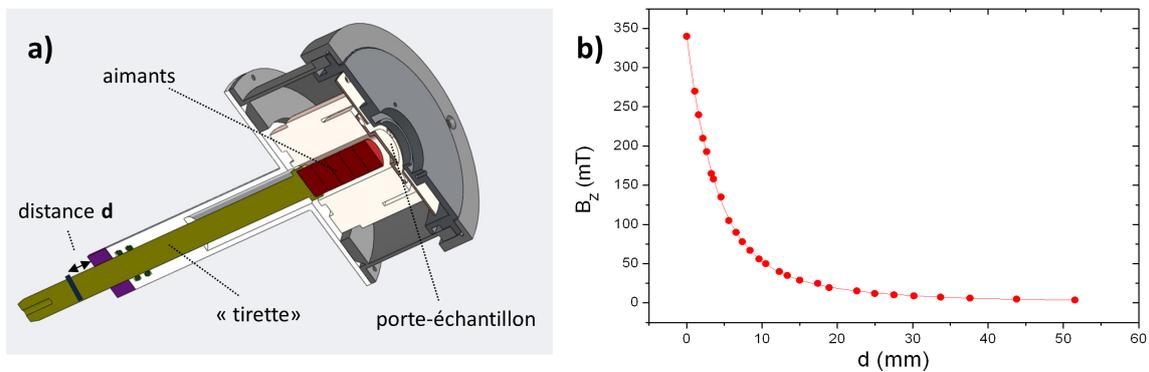


FIGURE 5.5 – a) Plan 3D du dispositif à "tirette" permettant de contrôler la distance d entre les aimants et l'échantillon, dans le cryostat Oxford Hi-Res2. b) Abaque de l'évolution du champ longitudinal avec la distance d (réalisée à l'aide d'un Gaussmètre).

La forte pente $\partial B_z / \partial d$ pour les faibles écarts d (cf. figure 5.5.b), ainsi qu'un ensemble de contraintes mécaniques, induisent une incertitude importante (~ 20 mT) pour les forts champs. Enfin, une dernière réalisation (non utilisée pour les résultats présentés dans ce manuscrit), permet de coller des aimants dans le plan de l'échantillon, et ainsi d'obtenir des champs Voigts, $B_x = 250$ mT, et $B_x = 550$ mT (pour deux espacements différents).

Échantillons étudiés

Différents échantillons (fabriqués au LPN par A. Lemaître) ont été utilisés dans les expériences qui suivent :

Échantillon	Dopage	Cavité	Nombre de plans	Densité	Nombre de BQ étudiées
62H18	neutre	$Q \sim 2000$	3	$5 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$	200
D2T112	neutre	700	1	$5 \cdot 10^8 \text{cm}^{-2}$	1-2

On notera que les cavités utilisées sont des cavités planaires asymétriques, présentant 12 paires de Bragg sur le dessus, et 24 en dessous du plan de BQ, pour une meilleure collection de la luminescence. Ces cavités sont de type λ et le plan de BQ au centre de la cavité va ainsi se situer sur un ventre du champ électrique confiné, ce qui va permettre d'améliorer le rapport signal sur bruit du champ émis [77]. Ces cavités présentent une biréfringence très faible, qui n'a pas d'incidence sur les études en polarisation. Cependant, il semblerait qu'elles aient un effet détériorant sur le front d'onde de la sonde, qui nuit aux interférences hétérodynes. La quantification de ces effets nécessiterait des études ultérieures, avec de nouveaux échantillons.

Chapitre 6

Cohérence et manipulation des états excités de paires électron-trou d'une boîte quantique non chargée

Ce chapitre est consacré à l'étude par une expérience pompe-sonde équipée d'une détection hétérodyne du système à trois niveaux (V) constitué par l'état fondamental d'une BQ non dopée, et les deux niveaux excités à une paire électron-trou $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, séparés par l'énergie d'échange anisotrope δ_1 . Nous nous intéresserons particulièrement à l'étude et à la manipulation de la cohérence des deux états excités $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, créés par l'excitation optique.

Nous présenterons tout d'abord le système étudié, son intérêt, et l'échantillon utilisé dans les expériences. Nous étudierons comment l'application d'un champ magnétique longitudinal affecte les états étudiés et leurs énergies. Ensuite nous modéliserons l'interaction de ce système avec l'impulsion excitatrice (pompe), nous nous intéresserons au champ induit par l'impulsion sonde. Nous verrons comment les différentes configurations d'analyse de la détection hétérodyne, permettent d'avoir accès aux différents termes de la matrice densité.

Nous présenterons les résultats des expériences menées dans la première configuration d'analyse (sonde et référence co-polarisées), en bonne adéquation avec le modèle développé. Ces résultats mettent en évidence l'influence du champ magnétique sur la phase des battements quantiques observés, associés à la structure fine.

Nous verrons comment la deuxième configuration d'analyse (sonde et référence contra-polarisées) permet une nouvelle observation, plus complexe, de ce phénomène.

Enfin, nous présenterons une étude similaire réalisée sur un échantillon *dilué*, et

nous verrons que la sensibilité de notre expérience permet d'étudier une BQ unique, ainsi que les effets de charge auxquels elle est soumise.

6.1 Présentation et modélisation du système étudié

Dans cette section, nous présenterons tout d'abord tous les éléments théoriques nécessaires à la compréhension de nos expériences. Nous commencerons par décrire l'échantillon étudié, et les caractéristiques des états propres des paires électron-trou à champ nul. Puis nous étudierons les nouveaux états propres du système en présence d'un champ magnétique longitudinal. L'excitation cohérente de ces états par une impulsion pompe sera alors traitée, et nous nous intéresserons à la dynamique attendue de la matrice densité. Enfin, nous calculerons le champ induit par le passage de la sonde, et nous verrons comment sa détection par interférence hétérodyne donne accès aux différents termes de la matrice densité de l'ensemble de BQ.

6.1.1 Échantillon de BQ non dopées et structure fine X/Y

L'échantillon utilisé dans cette étude est l'échantillon 62H18 (épitaxié par A. Lemaître au LPN). Il s'agit d'un échantillon contenant trois plans de BQ non dopées (de densité surfacique $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$), à l'intérieur d'une cavité planaire de facteur de qualité $Q \sim 2000$ (cf figure 6.1.a). La cavité est de type λ , et les plans de BQ sont situés sur un ventre de son mode. On suppose que l'énergie d'émission de ces BQ est répartie suivant une gaussienne de largeur $\Delta E_{BQ} = 10 \text{ meV}$ (comme pour l'échantillon 74K31); cependant, nous nous intéresserons uniquement aux BQ dont la transition fondamentale a une énergie *dans le mode* de la cavité, à 927,6 nm. En effet, le fort facteur de qualité de la cavité permet simultanément une exaltation importante de l'émission [110] et une forte sélectivité des BQ participant au signal¹. La photoluminescence dans le mode de la cavité peut être modélisée par une courbe lorentzienne de largeur $\Delta E_{cav} \sim 0,5 \text{ meV}$; mais son observation via l'objectif de forte ouverture numérique va provoquer un élargissement vers les hautes énergies du spectre observé (cf figure 6.1.c). On peut estimer le nombre de BQ sondées à la résonance : $N = 3n(\pi r_{sonde}^2) \frac{\Delta E_{cav}}{\Delta E_{BQ}} \approx 250$ BQ (où n est la densité surfacique de BQ, et r_{sonde} le rayon de la tache laser sonde sur l'échantillon). On étudie donc un ensemble restreint de BQ (environ 1000 fois plus petit que dans l'expérience homodyne). Néanmoins cet ensemble est suffisamment étendu pour qu'on puisse modéliser de façon continue les paramètres dispersés des BQ².

1. En effet, la largeur énergétique de la cavité ($\Delta E_{cav} \sim 0,5 \text{ meV}$) est inférieure bien que comparable à celle de l'impulsion laser ($\sim 0,75 \text{ meV}$).

2. En effet, l'écart type de l'ensemble $\frac{\sqrt{N}}{N} \sim 5\%$ reste faible; donc une modélisation de l'ensemble de BQ, présentant des paramètres dispersés, par des fonctions de densité de probabilité continues reste valable [45].

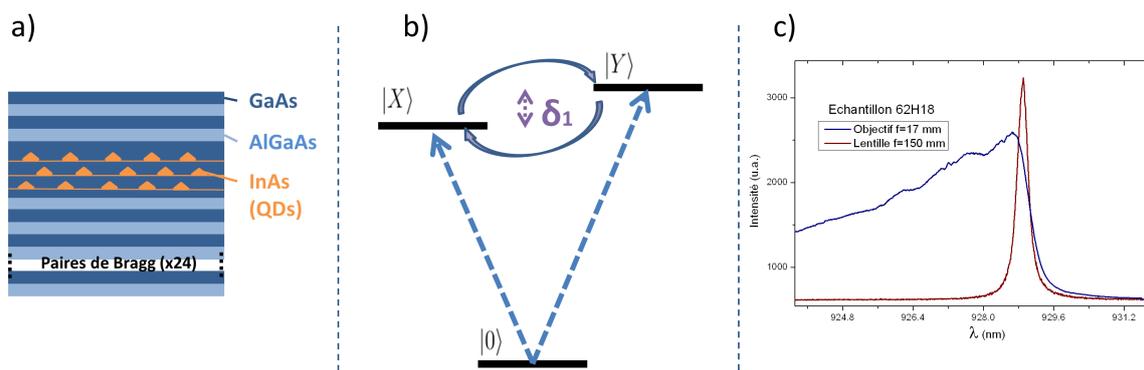


FIGURE 6.1 – a) Représentation schématique de l'échantillon, les trois plans de BQ de densité $n = 5.10^{10}$ sont situés au centre de la cavité planaire 12-24. Schéma non à l'échelle (i.e. les trois plans de BQ sont tous trois au centre de la cavité). b) Diagramme énergétique du système V constitué par les états $\{|0\rangle, |X\rangle, |Y\rangle\}$, l'ESF est définie comme : $\delta_1 = E_Y - E_X$, et l'énergie $\hbar\omega_0$ est définie par rapport à l'énergie centrale $\hbar\omega_0 = \frac{E_Y + E_X}{2}$. c) Photoluminescence de l'échantillon, excitée à 635 nm, collectée à travers une lentille de focale $f = 150$ mm (on observe alors la raie correspondant au mode de la cavité, $Q = 2000$), et à travers l'objectif $f = 17$ mm (on observe un élargissement vers les hautes énergies).

Ces BQ étant initialement vides, l'excitation d'une paire électron-trou donne lieu à une interaction d'échange entre ces deux charges, exaltée par le confinement anisotrope créé par la BQ. Comme décrit dans l'introduction, cette interaction d'échange anisotrope (*IEA*) provoque une polarisation linéaire des états propres des paires électron-trou. L'état $|X\rangle$ est polarisé suivant l'axe cristallographique $[110]$, et $|Y\rangle$ suivant $[1\bar{1}0]$. Ces états propres sont séparés par une énergie de *structure fine* (ESF), notée δ_1 (voir schéma 6.1.b). Dans les BQ d'InAs, δ_1 prend des signes et valeurs variables (dépendants de la BQ), valeurs cependant limitées à moins de $200 \mu\text{eV}$ [10, 123, 22, 112].

Récemment il a été montré qu'il est possible de modifier l'ESF, par le biais de l'application d'un champ électrique [66], ou par un champ de contraintes³ [97]. L'application conjointe de contraintes et d'un champ électrique permet ainsi son annulation [124], ce qui est particulièrement intéressant pour la conception de dispositifs photoniques exploitant la cascade radiative bi-excitonique [3].

L'approche de cette étude se situe dans un cadre complémentaire. En effet, l'application d'un champ magnétique longitudinal important permet de circulariser les états propres des excitons, et ainsi retrouver les états du cristal massif, $|J_z = \pm 1\rangle$, dont la projection du moment cinétique total est quantifiée selon l'axe z . La polarisation linéaire des états propres, observée à champ nul, correspond à une combinaison linéaire

3. L'utilisation de cavité planaire peut aussi exalter la création de modes de contraintes; cependant ceux-ci présentent des nœuds au niveau des ventres du champ électrique, et on peut ainsi supposer qu'ils ont une influence négligeable dans notre étude.

de ces états originaux, dont la modification permet, dans des régimes de champ intermédiaire, d'observer des états propres ayant une polarisation elliptique. Ces états vont nous imposer une écriture plus complexe du système, mais vont nous permettre d'étudier les effets fins de l'influence du champ appliqué sur la cohérence des états propres. En effet, comme nous allons le voir dans la section suivante, il est possible d'exciter de façon cohérente les états propres de la BQ, et ainsi d'observer un battement quantique entre ces états.

6.1.2 Hamiltonien Zeeman et ellipticité des états propres

Nous allons ici calculer les états propres d'une BQ non dopée, soumise à un champ magnétique parallèle à l'axe optique z (configuration Faraday). Nous verrons que les états à une paire électron-trou excités à l'énergie fondamentale, sont linéaires à champ nul, mais deviennent elliptiques avec l'application du champ. Dans tout ce chapitre, nous travaillerons dans le formalisme de la matrice densité, car c'est celui qui permet le mieux de visualiser les cohérences entre les états, dont nous souhaitons observer l'évolution. Il convient de préciser qu'on définit l'ESF comme : $\delta_1 = E_Y - E_X$, où E_j est l'énergie de l'état propre à champ nul $|j\rangle$. Enfin, dans tout ce chapitre, on supposera que les états de trous sont purement lourds, bien que les contraintes présentes dans la structure cristallographique provoquent un mélange de bande (trou lourds-légers), et donc une correction à la linéarité des états propres $|j\rangle$ [65, 123].

A cause de l'interaction d'échange anisotrope (décrite dans l'introduction), les états propres à l'énergie fondamentale de la BQ à champ nul sont :

$$|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle + |-\rangle) \quad (6.1)$$

$$|Y\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+\rangle - |-\rangle) \quad (6.2)$$

où $|\pm\rangle$, sont les états propres de la paire électron-trou lorsqu'on ne prend pas en compte l'interaction d'échange électron-trou, dont la projection du moment cinétique total est ± 1 suivant l'axe z . Le Hamiltonien Zeeman s'écrira⁴ : $H_Z = \frac{g_z \mu_B B_z}{2}(|+\rangle\langle +| - |-\rangle\langle -|)$; où g_z est le facteur de Landé longitudinal de la paire électron-trou. Les états noirs ne rentrent pas en considération ici, car il n'interagissent pas avec le laser.

Après le changement de base de H_Z , on obtient le Hamiltonien statique du système dans la base $|0\rangle, |X\rangle, |Y\rangle$:

$$H_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_0 - \frac{\delta_1}{2} & -i\frac{\hbar\omega_L}{2} \\ 0 & i\frac{\hbar\omega_L}{2} & \hbar\omega_0 + \frac{\delta_1}{2} \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

4. On remarque qu'avec une telle définition des états propre, l'état désigné $|+\rangle$ est l'état de plus haute énergie, donc avec la projection de spin anti-parallèle au champ appliqué.

où l'énergie de la transition $\hbar\omega_0$ est définie entre le niveau fondamental et la moyenne des énergies des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, et où $\omega_L = g_z\mu_B B_z$ est la pulsation de Larmor de la paire électron-trou. On peut alors calculer les valeurs propres de la matrice (6.3), qui vont nous donner les énergies des états propres du système :

$$\epsilon_{\pm} = \hbar\omega_0 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + (\hbar\omega_L)^2} \quad (6.4)$$

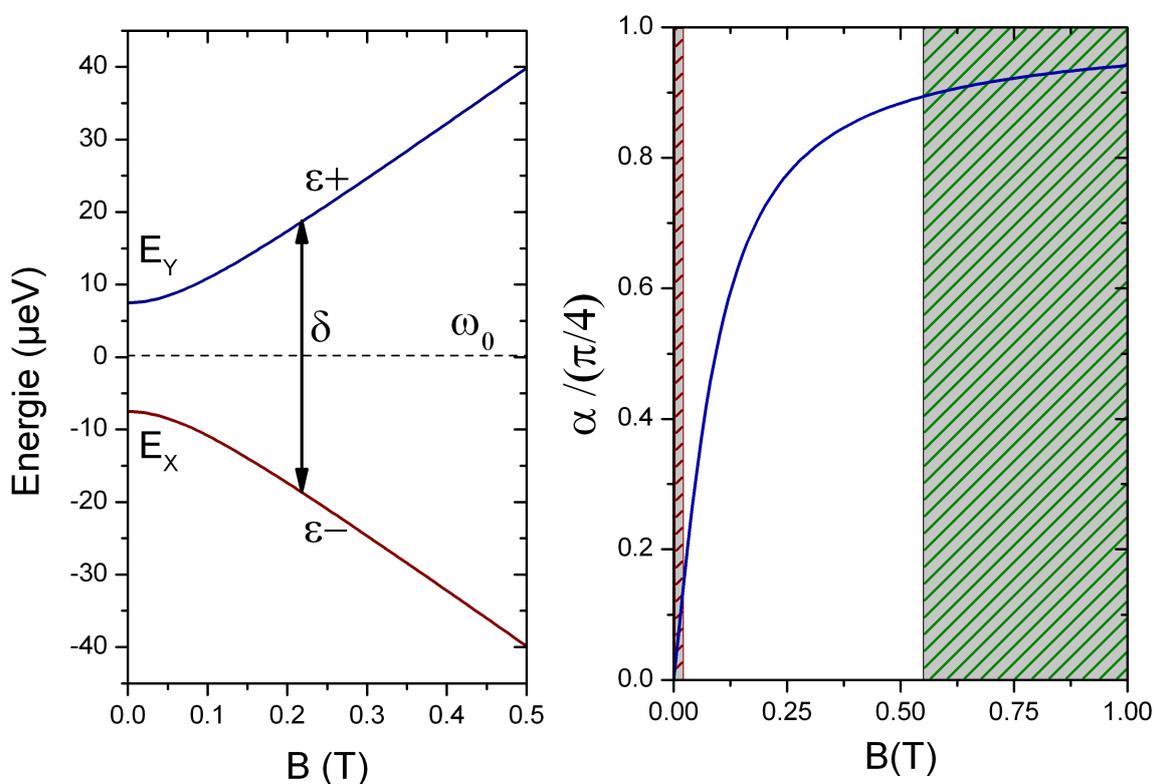


FIGURE 6.2 - a) Évolution de l'énergie des états propres ϵ_{\pm} , avec le champ appliqué (avec la convention $\hbar\omega_0 = 0$). L'état $|E_+\rangle$ (resp. $|E_-\rangle$) est à l'énergie E_Y (resp. E_X) à champ nul, et tend vers l'énergie $+\hbar\omega_L$ (resp. $-\hbar\omega_L$) à champ fort.

b) Évolution de l'angle α (en unités de $\frac{\pi}{4}$), en fonction du champ. La zone hachurée en rouge correspond à $\alpha < 0.1\pi/4$, aux champs ($B_z < 30$ mT) pour lesquels les états sont essentiellement linéaires. La zone hachurée en vert correspond à $\alpha > 0.9\pi/4$ ($B_z > 530$ mT), pour lesquels les états sont quasi-circulaires. Les paramètres utilisés pour ces deux figures sont ceux obtenus ultérieurement pour cet échantillon : $g_z = 2.8$ et $\delta_1 = 15\mu\text{eV}$.

On observe que l'énergie associée au Hamiltonien Zeeman, vient augmenter la différence d'énergie $\delta = \sqrt{\delta_1^2 + (\hbar\omega_L)^2}$ entre les deux états propres (cf figure 6.2). Mais le champ magnétique va aussi induire une évolution des états propres, qui vont devenir

elliptiques⁵. En effet, la diagonalisation de H_0 donne les états propres⁶ d'énergie ϵ_{\pm} :

$$|E+\rangle = \sin \alpha |X\rangle + i \cos \alpha |Y\rangle \quad (6.5)$$

$$|E-\rangle = \cos \alpha |X\rangle - i \sin \alpha |Y\rangle \quad (6.6)$$

où $\alpha = \frac{1}{2} \arctan(\frac{\hbar\omega_L}{\delta_1})$. Le paramètre α est celui qui nous permet au mieux de rendre compte de l'ellipticité des états propres $|E\pm\rangle$. En effet lorsque le champ magnétique est nul, $\alpha \rightarrow 0$ et les états propres sont bien linéaires. Cependant lorsque que $\hbar\omega_L \gg \delta_1$, $\alpha \rightarrow \frac{\pi}{4}$ et les états tendent vers les états propres circulaires : $|E\pm\rangle \rightarrow |\pm\rangle$. L'évolution du paramètre α est représentée sur la figure 6.2. Dans le régime intermédiaire, les états propres ont une symétrie elliptique, et c'est dans ce cas qu'ils présenteront la dynamique la plus complexe. Nous allons maintenant décrire comment une impulsion laser pompe va pouvoir exciter ces états propres.

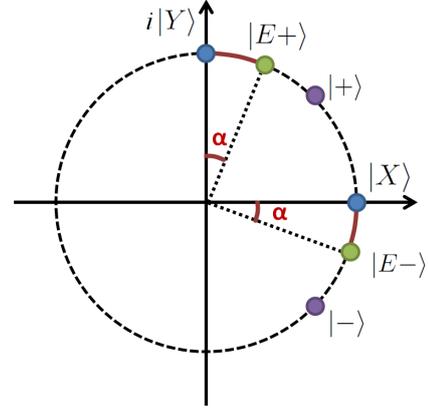


FIGURE 6.3 - Représentation des états elliptiques dans le plan complexe $\{|X\rangle, i|Y\rangle\}$.

6.1.3 Équations de Bloch et interaction du système avec le laser pompe

On traite ici de l'interaction du faisceau pompe avec la BQ. Encore une fois, on va pouvoir l'exprimer grâce au Hamiltonien d'interaction :

$$H_I = -d_j \cdot E_j(t) |0\rangle \langle j| + H.c. \quad (6.7)$$

où d_j est le dipôle associé à la transition $|0\rangle \leftrightarrow |j\rangle$, et $E_j(t) = E_{env,j}(t) \cdot e^{i\omega t} + c.c.$, est le champ électrique polarisé suivant l'axe j au niveau de la BQ, dont l'amplitude $E_{env,j}(t)$ varie pendant la durée de l'impulsion. On fait dès maintenant l'hypothèse, qui sera vérifiée expérimentalement par la suite, que les dipôles des transitions X et Y sont égaux (ce qui simplifie considérablement les calculs), et qu'ils ne varient pas avec les champs magnétiques appliqués dans cette étude.

On va donc pouvoir décrire l'excitation laser dans la base $\{|0\rangle, |X\rangle, |Y\rangle\}$, où dans la base propre $\{|0\rangle, |E-\rangle, |E+\rangle\}$. Si on note ξ l'angle entre l'axe de polarisation du faisceau pompe et l'axe x , on peut écrire le Hamiltonien comme :

5. L'application d'un champ magnétique provoque une modification des fonctions enveloppes de l'électron et du trou, et ainsi un shift diamagnétique de l'énergie de recombinaison. Cependant, celui-ci est $\propto B_z^2$, et reste très faible ($< 1\mu\text{eV}$) pour les champs appliqués ici [70].

6. A noter que l'écriture de ces états elliptiques a rarement été bien traitée, et présente même une erreur dans l'article de référence de M. Bayer [8]

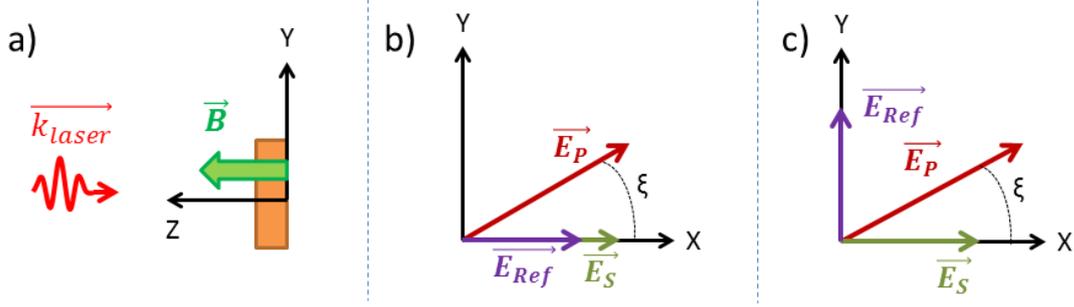


FIGURE 6.4 – a) Géométrie de l'expérience, l'échantillon est représenté en orange, et le champ appliqué longitudinal (parallèle à l'axe optique z). b) Configuration de réflectivité différentielle présentant les axes de polarisation des faisceaux dans le plan (xOy) , avec la référence parallèle à la sonde suivant l'axe x , et donnant le signal $R(\Delta t, \xi, X)$. c) Configuration de réflectivité différentielle présentant la référence perpendiculaire à la sonde, suivant l'axe y , et donnant le signal $R(\Delta t, \xi, Y)$

$$H_I = -\hbar\Omega(t)e^{i\omega t} \left[\cos \xi |0\rangle \langle X| + \sin \xi |0\rangle \langle Y| \right] + H.c. \quad (6.8)$$

$$= -\hbar\Omega(t)e^{i\omega t} \left[(\cos \xi \sin \alpha + i \sin \xi \cos \alpha) |0\rangle \langle E_+| \right. \quad (6.9)$$

$$\left. + (\cos \xi \cos \alpha - i \sin \xi \sin \alpha) |0\rangle \langle E_-| \right] + H.c. \quad (6.10)$$

où on définit l'angle de Rabi, $\Omega(t) = \frac{d.E_{env}(t)}{\hbar}$. A partir de cette équation, on remarque dès maintenant que pour une polarisation linéaire d'angle ξ donnée de la pompe, le poids et la phase associés à chacune des transitions, vont varier avec le champ (via le paramètre α). Cependant, pour les polarisations $\xi = 0$ ou $\xi = \frac{\pi}{2}$, les amplitudes associées à chaque transition sont purement imaginaires, ou purement réelles, ce qui empêche l'évolution de la phase initiale entre les deux états avec le champ. Dans le cas $\xi = \frac{\pi}{4}$, l'argument associé au couplage entre l'état fondamental et $|E_+\rangle$ est : $Arg(\sin \alpha + i \cos \alpha) = \frac{\pi}{2} - \alpha$ et celui associé à l'autre transition est $(-\alpha)$; il en résulte une différence de phase fixe entre les deux états. Pour observer les effets de déphasage liés au champ, on va devoir utiliser d'autres configurations de polarisations. Enfin l'équation (6.8) nous permet bien de retrouver le comportement à champ nul du système, étudié dans la référence [14], pour lequel l'excitation des états polarisés linéairement va suivre directement la polarisation du laser pompe, et en particulier les polarisations $\xi = \pm \frac{\pi}{4}$ vont produire des superpositions d'états aux phases opposées.

On va maintenant intégrer l'évolution, induite par ce Hamiltonien durant l'impulsion, de la fonction d'onde : $|\psi\rangle = a_0(t) |0\rangle + a_x(t) |X\rangle + a_y(t) |Y\rangle$. L'équation de Schrödinger donne alors :

$$\dot{a}_0 = i\Omega_x \tilde{a}_x(t) + i\Omega_y \tilde{a}_y(t) \quad (6.11)$$

$$\dot{\tilde{a}}_x = i\Omega_x a_0(t) + i \left(\omega - \left(\omega_0 - \frac{\delta_1}{2\hbar} \right) \right) \tilde{a}_x(t) \quad (6.12)$$

$$\dot{\tilde{a}}_y = i\Omega_y a_0(t) + i \left(\omega - \left(\omega_0 + \frac{\delta_1}{2\hbar} \right) \right) \tilde{a}_y(t) \quad (6.13)$$

où : $\Omega_x = \Omega(t) \cos \xi$ et $\Omega_y = \Omega(t) \sin \xi$. Pour simplifier l'écriture, on écrit : $\tilde{a}_j(t) = a_j(t) e^{i\omega t}$ où ($j = \{0, x, y\}$). L'intégration est facilitée sous l'hypothèse de résonance du laser avec chaque transition. Dans le cas où le laser est spectralement centré sur l'énergie $\hbar\omega_0$, le désaccord énergétique avec chaque transition est de $\pm \frac{\delta}{2}$. Ainsi, pour que la condition de résonance soit respectée, l'impulsion laser doit être bien plus large spectralement que la différence d'énergie δ , ce que l'on peut écrire $\frac{\hbar}{\tau} \gg \delta$, où τ est la durée caractéristique d'une impulsion. Dans le cas d'une impulsion de $\tau \sim 2$ ps, cette condition est vérifiée pour $\delta < 100 \mu\text{eV}$, et donc dans tout le cadre de notre étude⁷. Nous pourrions ainsi considérer que les états propres sont adressés par le laser à la résonance, et nous pourrions ignorer leur élargissement inhomogène. Les derniers termes des équations de $\dot{\tilde{a}}_i(t)$ peuvent donc être négligés, et on peut écrire :

$$\frac{d^2 a_0(t)}{dt^2} + |\Omega|^2 a_0(t) = 0 \quad (6.14)$$

La BQ étant initialement vide, à la fin de l'impulsion laser de durée τ on a donc bien : $a_0(t = 0^+) = \cos(\theta)$ où $\theta = \int \Omega(t') dt'$ est l'aire de Rabi de l'impulsion ($\theta \approx \Omega(0)\tau$ sous l'hypothèse de résonance faite précédemment). On peut alors calculer les deux autres coefficients de la fonction d'onde, et grâce au produit tensoriel $\rho = |\psi\rangle \langle \psi|$, on obtient la matrice densité (dans la base $\{|0\rangle, |E-\rangle, |E+\rangle\}$) juste après le passage de l'impulsion :

$$\rho(0^+) = \begin{pmatrix} \cos^2(\frac{\theta}{2}) & \times & \times \\ \times & \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})(1 + \cos 2\alpha \cos 2\xi) & \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})(\cos 2\xi \sin 2\alpha - i \sin 2\xi) \\ \times & \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})(\cos 2\xi \sin 2\alpha + i \sin 2\xi) & \frac{1}{2} \sin^2(\frac{\theta}{2})(1 - \cos 2\alpha \cos 2\xi) \end{pmatrix}$$

Les termes de cohérence inter-bande, qui ne nous intéressent pas pour le moment, sont ici notés \times . Une fois initialisée, la matrice densité va évoluer en suivant la dynamique donnée par l'équation de Liouville :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H_0, \rho] - \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{rad} - \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{decoh} \quad (6.15)$$

Dans cette équation, le commutateur est responsable de l'évolution cohérente de la matrice densité (traduite par la rotation des termes de cohérence à la pulsation

7. Cependant, on notera que l'impulsion est plus large que la limite de Fourier $\frac{\hbar}{\tau}$, ce qui étend le domaine de validité de cette condition.

$\frac{\delta}{\hbar}$). Les autres termes de l'équation permettent de prendre un compte l'évolution incohérente de la matrice densité, due à la recombinaison radiative des états excités en τ_{rad} , et à la décohérence des battements quantiques en un temps T_2 . De plus, on considère que les temps de relaxation T_1 de $|X\rangle \leftrightarrow |Y\rangle$ très long par rapport au temps radiatif (comme confirmé par les références [65, 106]). Ainsi on peut décrire l'évolution libre de la matrice densité, pour les populations :

$$\rho_{00}(t) = 1 - \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{-t/\tau_{rad}} \quad (6.16)$$

$$\rho_{--}(t) = \frac{1}{2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)(1 + \cos 2\alpha \cos 2\xi)e^{-t/\tau_{rad}} \quad (6.17)$$

$$\rho_{++}(t) = \frac{1}{2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)(1 - \cos 2\alpha \cos 2\xi)e^{-t/\tau_{rad}} \quad (6.18)$$

et pour les cohérences :

$$\rho_{+-}(t) = \frac{1}{2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)(\cos 2\xi \sin 2\alpha + i \sin 2\xi)e^{i\frac{\delta}{\hbar}t}e^{\frac{t}{T_2}}e^{-t/\tau_{rad}} \quad (6.19)$$

$$\rho_{-+}(t) = (\rho_{+-})^\dagger \quad (6.20)$$

La modélisation établie permet de rendre compte de l'excitation du système par l'impulsion pompe et donne son évolution libre. Afin de vérifier la validité de cette modélisation et d'observer l'évolution temporelle des états photo-excités, on fait interagir les BQ avec le faisceau sonde. Le champ émis sera ensuite amplifié par la détection hétérodyne.

6.1.4 Interaction du faisceau sonde avec une boîte quantique neutre

On a noté ρ la matrice densité décrivant l'évolution libre du système, qui évolue selon l'éq. (6.15), et on note maintenant σ la matrice densité prenant en compte l'évolution du système due au passage de la sonde à un délai Δt après l'initialisation. La durée de l'impulsion sonde τ étant courte par rapport aux autres constantes d'évolutions du système (τ_{rad} , T_2 et $\frac{\hbar}{\delta}$), l'évolution de la matrice densité pendant le passage de la sonde sera donc décrite de façon complètement cohérente par l'équation de Liouville :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}[H_0 + H_{sonde}(t), \sigma] \quad (6.21)$$

où le Hamiltonien d'interaction avec l'impulsion sonde polarisée suivant x (i.e. $\xi_{sonde} = 0$) s'écrit ⁸ :

$$\hat{H}_{sonde}(t) = -\hbar\Omega_s(t)e^{i\omega_s t} \left(i \sin \alpha |0\rangle \langle E+| + i \cos \alpha |0\rangle \langle E-| \right) + H.c. \quad (6.22)$$

où $\Omega_s(t)$ est l'angle de Rabi de l'impulsion sonde, qui suit son enveloppe centrée en Δt et de largeur τ . A la résonance, et au premier ordre en champ sonde, on peut écrire la solution $\sigma(t)$ comme :

$$\sigma(t) \approx \rho(\Delta t) - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t [\hat{H}_{sonde}(t'), \rho(t')] dt' \quad (6.23)$$

pendant la durée de l'impulsion (i.e. $\Delta t - \frac{\tau}{2} < t < \Delta t + \frac{\tau}{2}$). Cette expression est valide dans la limite d'une impulsion de faible aire de Rabi ($\Omega_s(\Delta t)\tau \ll 1$), et dans la limite où $|\Omega_s(\Delta t)| \ll |\Omega(0)|$ (i.e. puissance de la sonde moindre par rapport à celle de la pompe). Sous ces conditions, la correction de la matrice densité due au passage de la sonde (le deuxième terme dans l'éq. [6.23]), ne sera qu'une petite modification de la matrice densité excitée par la pompe. Cependant, seul ce deuxième terme prend en compte à la fois l'interaction de la sonde et de la pompe avec l'échantillon, et ainsi lui seul participe au signal photo-induit ⁹.

Le développement de l'équation (6.23), donne les termes inter-bande de la matrice densité σ :

$$\sigma_{+0} = \rho_{+0} + i\theta_s([\rho_{00} - \rho_{++}] \sin \alpha - \rho_{+-} \cos \alpha) e^{i\omega_s t} \quad (6.24)$$

$$\sigma_{-0} = \rho_{-0} + i\theta_s([\rho_{00} - \rho_{--}] \cos \alpha - \rho_{-+} \sin \alpha) e^{i\omega_s t} \quad (6.25)$$

où $\theta_s = \int \Omega_s(t') dt'$ est l'aire de Rabi de l'impulsion sonde. Ces termes inter-bandes sont ceux qui nous intéressent ici, car ce sont eux qui vont intervenir dans l'émission stimulée des BQ. En effet, lorsqu'on s'intéresse au dipôle moyen induit suivant x , $\langle d_x \rangle(t) = Tr[\sigma \hat{d}_x]$, la projection de $|X\rangle$ donne :

$$\langle d_x \rangle(t) = -d_x \left[\langle E+| \sigma |0\rangle \langle X|E+ \rangle + \langle E-| \sigma |0\rangle \langle X|E- \rangle \right] \quad (6.26)$$

$$= -d_x \left[\sin(\alpha) \sigma_{+0}(t) + \cos(\alpha) \sigma_{-0}(t) \right] \quad (6.27)$$

En ne gardant que les termes de σ induits par le passage de la sonde, et à la même fréquence optique que celle-ci, on obtient la dépendance du dipôle stimulé :

$$\langle d_x \rangle(t) = -id_x \theta_s e^{i\omega_s t} \left(\rho_{00} - \sin^2(\alpha) \rho_{++} - \cos^2(\alpha) \rho_{--} - \frac{\sin 2\alpha}{2} (\rho_{+-} + \rho_{-+}) \right) \quad (6.28)$$

8. Comme expliqué précédemment, la pulsation du champ sonde est décalée par rapport à la pompe, et s'écrit : $\omega_s = \omega + \omega_1$. Or ω_1 est très faible devant les largeurs homogènes des transitions adressées, et il ne remet pas en cause la condition de résonance. On écrira la sonde comme étant à la pulsation ω_s dans ce qui suit, sans que cela n'implique de changements dans le déroulement des équations.

9. En effet, on remarquera par la suite, que lui seul induit un champ à $\omega_s = \omega + \omega_1$ d'une part, et contient des termes de ρ modulés à la fréquence de modulation f_{II} de la pompe d'autre part.

On remarque que ce dipôle ne dépend, au premier ordre, que de la matrice $\rho(t)$ décrivant le système initialisé par le passage de la pompe et dont l'évolution libre est définie par les équations (6.16). D'où l'évolution temporelle du dipôle :

$$\begin{aligned} \langle d_x \rangle(t) = -id_x \theta_s \sin^2 \frac{\theta}{2} e^{i\omega_s t} e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{rad}}} \left(\right. & - [3 + \cos 2\xi \cos^2(2\alpha)] \\ & \left. + e^{-\frac{\Delta t}{T_2}} \sin 2\alpha \left[\sin\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar}\right) \sin 2\xi - \cos\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar}\right) \cos 2\xi \sin 2\alpha \right] \right) \end{aligned} \quad (6.29)$$

De la même façon, la sonde polarisée suivant x excite aussi un dipôle suivant l'axe y :

$$\begin{aligned} \langle d_y \rangle(t) = -d_y i \theta_s \sin^2 \frac{\theta}{2} e^{i\omega_s t} e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{rad}}} \left(\right. & - [i \cos 2\xi \cos 2\alpha \sin 2\alpha] \\ & + e^{-\frac{\Delta t}{T_2}} \left[\sin\left(\frac{\delta t}{\hbar}\right) (\cos 2\xi \sin 2\alpha - i \sin 2\xi \cos 2\alpha) \right. \\ & \left. + \cos\left(\frac{\delta t}{\hbar}\right) (\sin 2\xi + i \cos 2\xi \sin 2\alpha \cos 2\alpha) \right] \left. \right) \end{aligned} \quad (6.30)$$

L'évolution de ces dipôles dans le temps induit des courants surfaciques, qui créent des champs électriques (vu par le détecteur) proportionnels aux dipôles :

$$E_j^{BQ}(t) = C [\langle d_j \rangle(t) + c.c.] \quad (6.31)$$

où : $C = i \frac{\mu_0}{2} \omega_1^2 \beta$, avec μ_0 comme permittivité magnétique et β un facteur complexe qui permet de prendre en compte l'influence de la cavité et la phase introduite par la propagation dans l'échantillon. Le signal obtenu sur le détecteur sera issu de l'interférence de ce champ avec le faisceau référence.

Détection hétérodyne du signal de réflectivité suivant x

On traite ici le cas où la sonde et la référence sont alignées suivant x . Comme décrit au chapitre précédant, le champ sonde et le champ émis par les BQ vont interférer avec le champ référence. En prenant en compte un désalignement faible des polarisations¹⁰, et en gardant uniquement les termes à la fréquence différence ($\omega_s - \omega_{ref}$), on a :

$$\left(\vec{E}_s(t) + \vec{E}_{BQ}(t) \right) \cdot \vec{E}_{ref}(t) = E_{ref}^{env}(t) \cdot E_s^{env}(t) e^{i\Phi_s} e^{i(\omega_s - \omega_{ref})t} + c.c. \quad (6.32)$$

$$+ E_{ref}^{env}(t) \cdot E_{BQ}^{env}(t) e^{i(\omega_s - \omega_{ref})t} + c.c. \quad (6.33)$$

où les fonction $E_j^{env}(t) = E_j^0 \cdot p(t)$ permettent de prendre en compte l'évolution temporelle de l'enveloppe temporelle $p(t)$ des impulsions, et la phase Φ_s est introduite afin de rendre compte de la différence de phase entre la sonde et le champ des BQ (due

10. Dans le cas où sonde et référence sont alignées, ce désalignement ne provoque pas de termes supplémentaire, contrairement au cas traité dans la partie 6.3.

au trajet optique dans l'échantillon). La détection *lisse* l'enveloppe $p(t)$ et démodule le signal à la fréquence $\omega_s - \omega_{ref}$. Ainsi, l'amplitude du signal obtenu après le premier étage de la détection synchrone est ¹¹ :

$$R_1 \propto |E_{ref}^0| |E_s^0 e^{i\Phi_s} + E_{BQ}^0| \propto |E_{ref}^0| \left(|E_s^0| + \Re(E_{BQ}^0 \frac{E_s^{0*}}{|E_s^0|} e^{-i\Phi_s}) \right) \quad (6.34)$$

Le deuxième étage de démodulation va permettre de filtrer le terme en $|E_s^0|$ (provenant de la sonde qui n'a pas interagité avec l'échantillon), qui n'est pas modulé à la fréquence de la pompe $f_{chopper}$. Ainsi à la sortie du deuxième étage on obtient le signal de réflectivité suivant x en fonction du délai Δt et de l'angle d'excitation ξ :

$$R(\Delta t, \xi, X) = A_X(t) e^{\frac{-\Delta t}{\tau_{rad}}} \left(+ [3 + \cos 2\xi \cos^2(2\alpha)] \right. \quad (6.35) \\ \left. + e^{-\frac{\Delta t}{T_2}} \sin 2\alpha \left[\cos\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar}\right) \cos 2\xi \sin 2\alpha - \sin\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar}\right) \sin 2\xi \right] \right)$$

où le préfacteur $A_X(t) = |E_{ref}^0| \mu_0 \omega_s^2 \theta_s d_x \sin^2 \frac{\theta}{2} \sin \Phi_s$ est difficilement quantifiable et ne contient pas les paramètres observables dans l'expérience, il sera donc omis. Cependant, ce signal doit nous permettre d'observer les temps caractéristiques et les amplitudes relatives du déclin des populations et des cohérences de la matrice densité, qui sont les intérêts majeurs de la modélisation présentée.

Dans cette partie, nous avons calculé les états propres d'une BQ soumise à un champ longitudinal. L'excitation produite par une impulsion laser pompe linéairement polarisée a ensuite été modélisée. Enfin nous avons vu comment l'interaction de la sonde avec la BQ pouvait stimuler l'émission d'un champ électrique $E_X^{BQ}(t)$, et comment celui-ci était analysé afin d'obtenir le signal de réflectivité différentielle $R(\Delta t, \xi, X)$. Nous allons maintenant présenter les résultats expérimentaux obtenus dans cette configuration d'analyse, qui permettent de confirmer ce modèle.

6.2 Signal de réflectivité obtenu sur un ensemble de boîtes quantiques non dopées : référence co-polarisée à la sonde

Dans cette section, nous allons examiner le signal obtenu expérimentalement dans la configuration de détection présentant les faisceaux sonde et référence polarisés suivant x . Nous allons ainsi vérifier la validité de l'expression (6.35), d'abord en champ nul, puis en appliquant un champ longitudinal. L'ellipticité des états propres $|E+\rangle$ et $|E-\rangle$ va nous permettre d'exciter des superpositions d'états, même en utilisant une

11. Dans ce calcul, on fait l'hypothèse (largement vérifiée) que $|E_s^0| \gg |E_{BQ}^0|$

pompe polarisée linéairement ; et ainsi d'observer des battements quantiques. Ces battements nous permettront d'estimer l'énergie de structure fine, ainsi que le facteur de Landé de la paire électron-trou. Enfin, nous nous pencherons sur un cas de polarisation d'excitation plus compliqué, qui justifiera la suite de l'analyse.

6.2.1 Système de boîtes quantiques non dopées en l'absence de champ appliqué

Nous allons tout d'abord examiner la réflectivité différentielle des BQ, en l'absence de champ magnétique. Dans ce cas, les états à une paire électron-trou sont polarisés linéairement $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, comme décrit au début de ce chapitre. Le champ électrique émis par ces états a donc lui aussi une polarisation linéaire, et le faisceau référence (polarisé suivant x) amplifie sa composante suivant x . En champ nul, $B_z = 0$ implique $\alpha = 0$, et le signal obtenu, lorsque les polarisations sonde et référence sont alignées suivant x , prend l'expression simplifiée :

$$R(\Delta t, \xi, X) = (3 + \cos 2\xi)e^{-\Delta t/\tau_{rad}} \quad (6.36)$$

On voit donc que seul le terme non oscillant, dû à la différence de population $(\rho_{00} - \rho_{XX})$ subsiste, et décroît en un temps τ_{rad} ¹². Le signal obtenu lors d'une excitation suivant x ($\xi = 0$) est présenté sur la figure 6.5. Il présente effectivement une décroissance mono-exponentielle, pour laquelle l'ajustement donne : $\tau_{rad} = 710 \pm 10\text{ps}$.

L'excitation suivant l'axe y , avec les polarisations de la sonde et de la référence suivant y , va donner un signal qui va suivre une expression analogue à l'équation (6.36)¹³. Dans ce cas, la pompe va exciter seulement l'état $|Y\rangle$, et la sonde va détecter la différence de population $(\rho_{00} - \rho_{YY})$ qui va être amplifiée par la référence. Ce signal est présenté sur la même figure, et son amplitude est artificiellement fixée négative pour plus de clarté. On peut voir qu'il est de même amplitude que le signal $R(\Delta t, 0, X)$, et il est ajusté avec la même constante de temps τ_{rad} . Ceci confirme l'hypothèse faite dans les calculs, d'égalité des dipôles associés aux transitions $|0\rangle \leftrightarrow |X\rangle$ et $|0\rangle \leftrightarrow |Y\rangle$. En effet, la force d'oscillateur est inversement proportionnelle au temps de vie radiatif [116]. Cette valeur de $\tau_{rad} = 710 \pm 10\text{ps}$ n'évolue pas dans la gamme des champs appliqués, et sera utilisée dans tout le reste de cette étude.

Ces mesures nous permettent de vérifier que dans le cas où les trois faisceaux sont polarisés suivant le même axe, en l'absence de champ magnétique appliqué, le signal de réflectivité photo-induite mesuré est proportionnel au terme de population.

12. On rappelle qu'on néglige les processus de relaxation $|X\rangle \leftrightarrow |Y\rangle$, qui se font en un temps $\tau_{relax} \gg \tau_{rad}$ (il est estimé dans la référence [65] que $\tau_{relax} \sim 10\tau_{rad}$).

13. Il ne faut cependant pas le confondre avec le signal $R(\Delta t, \xi, Y)$ explicité par la suite, pour lequel la sonde est suivant x et seule la référence est polarisée suivant y .

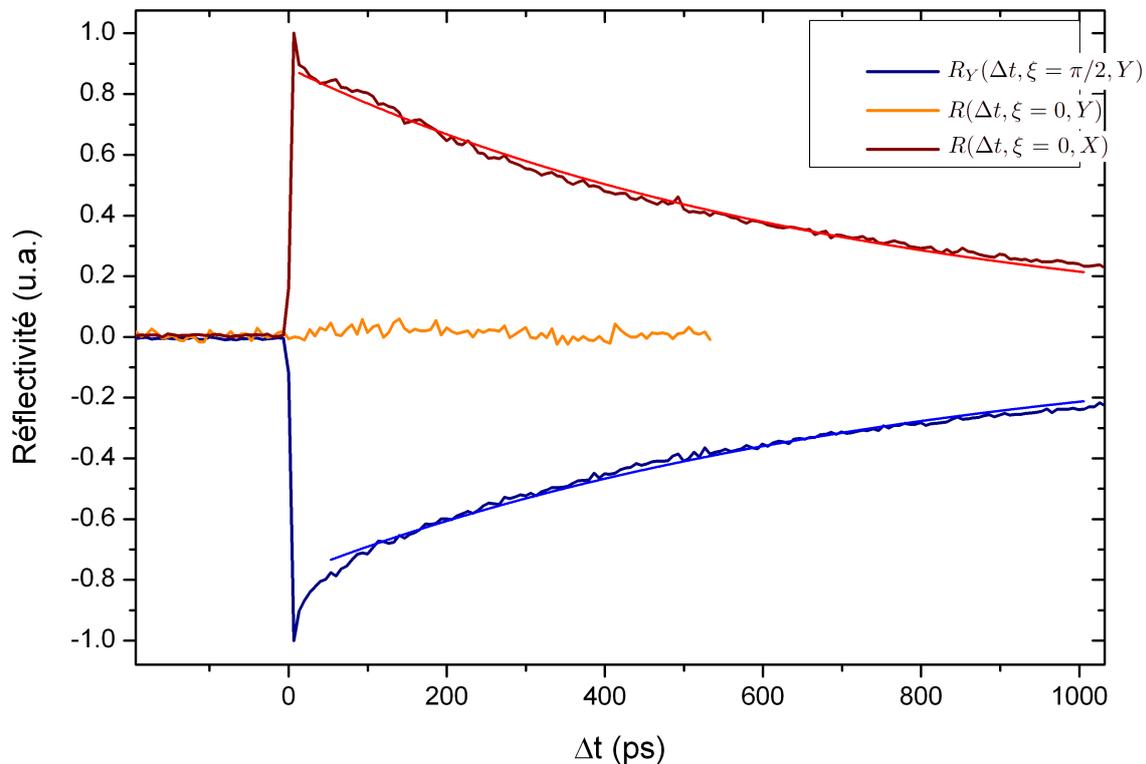


FIGURE 6.5 – Signaux de réflectivité différentielle correspondant aux cas : $R(\Delta t, \xi = 0, X)$ (tous les faisceaux sont polarisés suivant x et on mesure le déclin radiatif de la population de $|X\rangle$), $R_Y(\Delta t, \xi = \pi/2, Y)$ (tous les faisceaux sont polarisés suivant y), et $R(\Delta t, \xi = 0, Y)$ (faisceaux pompe et référence polarisés suivant x , et faisceau référence suivant y) multiplié par un facteur dix. Cette dernière configuration permet de vérifier que lors d'un pompage linéaire d'un seul état, on n'introduit pas de population de l'autre ni de cohérence entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, et donc la sonde n'induit pas de dipôle contra-polarisé à l'état qu'elle adresse. Les signaux RDX et RDY sont représentés avec leurs ajustement qui donnent $\tau_{rad} = 710 \pm 10ps$.

On peut ainsi obtenir le temps de vie radiatif associé à l'ensemble de BQ. Cependant, ces conditions expérimentales ne permettent pas de mesurer l'énergie δ_1 , ni d'observer la cohérence entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Dans ce but, on va appliquer un champ magnétique longitudinal sur l'échantillon.

6.2.2 Observation de battements quantiques en champ magnétique longitudinal

On applique maintenant un champ magnétique le long de l'axe optique z . Le champ rend elliptiques les états propres de la BQ, qui deviennent $|E_+\rangle$, et $|E_-\rangle$, conformément à l'équation (6.5). Lors d'une excitation linéairement polarisée, suivant x ou y ($\xi = 0$, $\xi = \frac{\pi}{2}$), les signaux de réflectivité différentielle obtenus expérimentalement pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué sont représentés sur la figure

6.6.

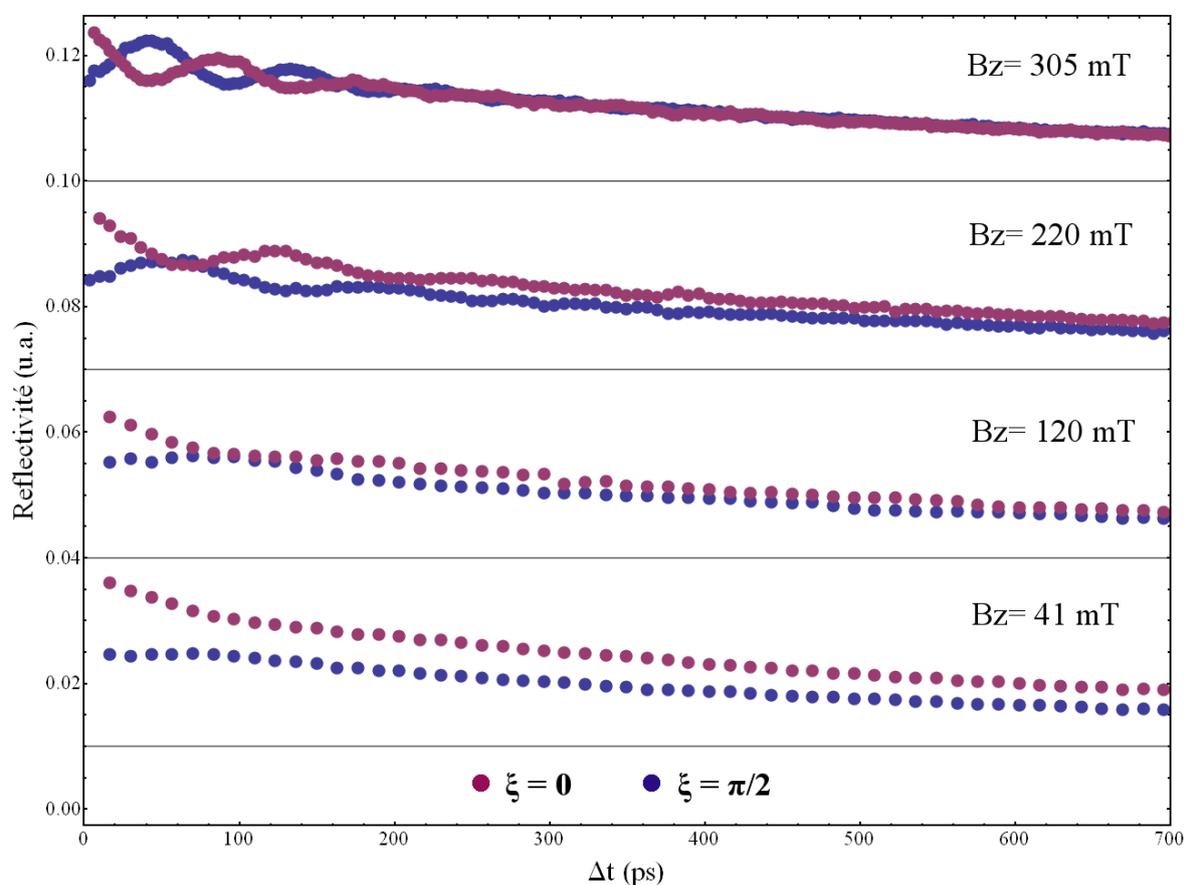


FIGURE 6.6 – Signaux de réflectivité différentielle (dans la configuration sonde et référence co-polarisées suivant x), en fonction du délai temporel Δt , $R(\Delta t, \xi, X)$, pour $\xi = 0$ (points bleus) et $\xi = \pi/2$ (points rouges), et pour quatre champs (41, 120, 220, 305 mT). On remarque trois tendances : l'apparition d'oscillations à l'amplitude croissante avec le champ, l'augmentation de la fréquence de ces oscillations, et la diminution de la différence d'amplitude du terme de population entre $\xi = 0$ et $\xi = \pi/2$.

La réflectivité différentielle présente toujours une décroissance exponentielle en τ_{rad} . Cependant, on remarque qu'il s'ajoute à celle-ci une oscillation amortie, dont l'amplitude et la fréquence croissent avec la valeur du champ magnétique appliqué. Cette évolution est effectivement prédite par l'expression (6.35), qui présente des termes oscillant $\cos(\frac{\Delta t \delta}{\hbar})$ et $\sin(\frac{\Delta t \delta}{\hbar})$; on peut donc la réécrire :

$$R(\Delta t, \xi, X) = (3 + \cos 2\xi \cos^2 2\alpha) e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{rad}}} - A(\xi, \alpha) \sin\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar} + \Psi(\xi, \alpha)\right) e^{-\frac{\Delta t}{T_2}} e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{rad}}} \quad (6.37)$$

où

$$A(\xi, \alpha) = \sqrt{\sin^2(2\xi) \sin^2(2\alpha) + \cos^2(2\xi) \sin^4(2\alpha)} \quad (6.38)$$

$$\Psi(\xi, \alpha) = -\arctan \left[\frac{\sin(2\alpha)}{\tan(2\xi)} \right] \quad (6.39)$$

sont respectivement l'amplitude et la phase de l'oscillation, induite par la cohérence des états $|E+\rangle$ et $|E-\rangle$, qu'on appellera *battement quantique*. On trace l'évolution de A et Ψ en fonction de l'énergie Zeeman (δ_Z) sur la figure 6.7. On voit donc que l'augmen-

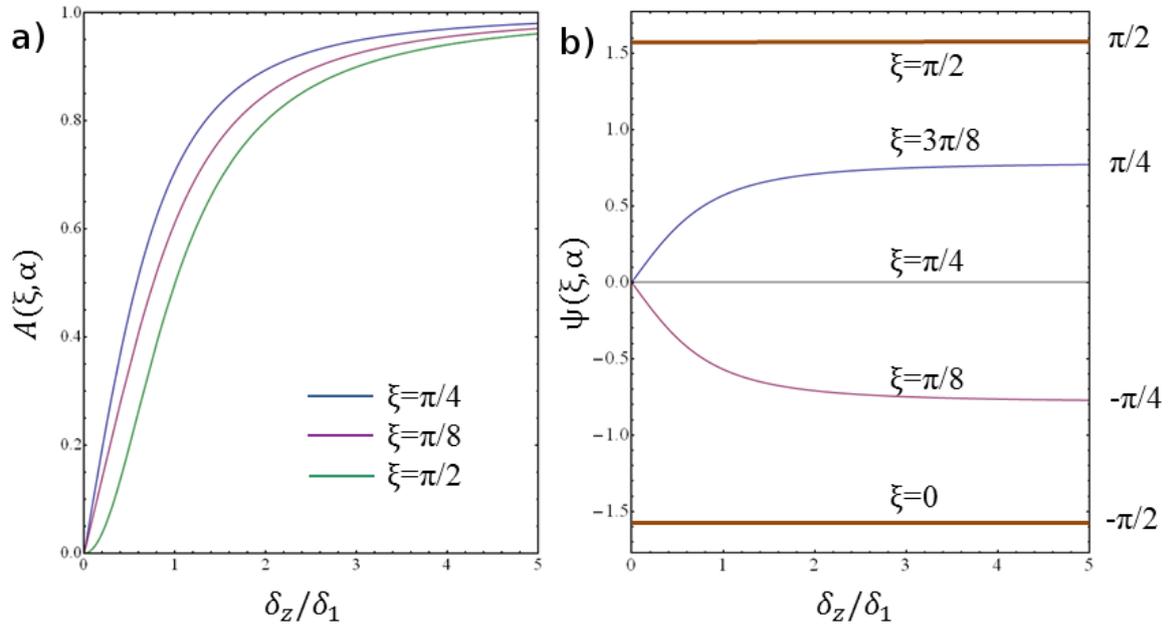


FIGURE 6.7 – Évolution de A (a) et de Ψ (b) en fonction de $\frac{\delta_Z}{\delta_1}$, pour plusieurs valeurs de ξ . On peut voir que l'amplitude des battements croît rapidement avec le champ, quelque soit l'axe de polarisation du faisceau pompe. Leur phase Ψ va être constante pour $\xi = \{0, \pi/4, \pi/2\}$, mais lorsque ξ diffère elle varie rapidement pour $\frac{\delta_Z}{\delta_1} < 1$.

tation de l'amplitude du battement quantique avec une valeur de champ magnétique croissante est bien prévue par le modèle. Cette augmentation est quasi indépendante de la polarisation d'excitation. Ainsi, même avec une polarisation de la pompe suivant les axes x et y ($\xi = 0, \frac{\pi}{2}$), on observe des battements quantiques, car les états de paire électron-trou créés $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont des superpositions des nouveaux états propres $|E+\rangle$ et $|E-\rangle$, qui sont séparés par l'énergie δ .

La différence d'énergie δ est croissante avec B_z , et gouverne la fréquence des battements. En ajustant cette fréquence pour les différents champs, on peut obtenir l'évolution de δ avec le champ B_z . L'ajustement de cette évolution par l'expression théorique $\delta = \sqrt{\delta_1^2 + (\mu_B g_z B_z)^2}$, est représenté sur la figure 6.8. Cet ajustement nous permet d'estimer les valeurs moyennes pour notre ensemble de BQ : $\bar{g}_z = 2,8$ et $\bar{\delta}_1 = 15 \mu\text{eV}$.

La valeur $\bar{g}_z = 2,8$ est très proche du facteur Landé de l'exciton mesuré précédemment par notre équipe sur des BQ similaires ($g_z \sim 2,5$ mesuré dans la référence

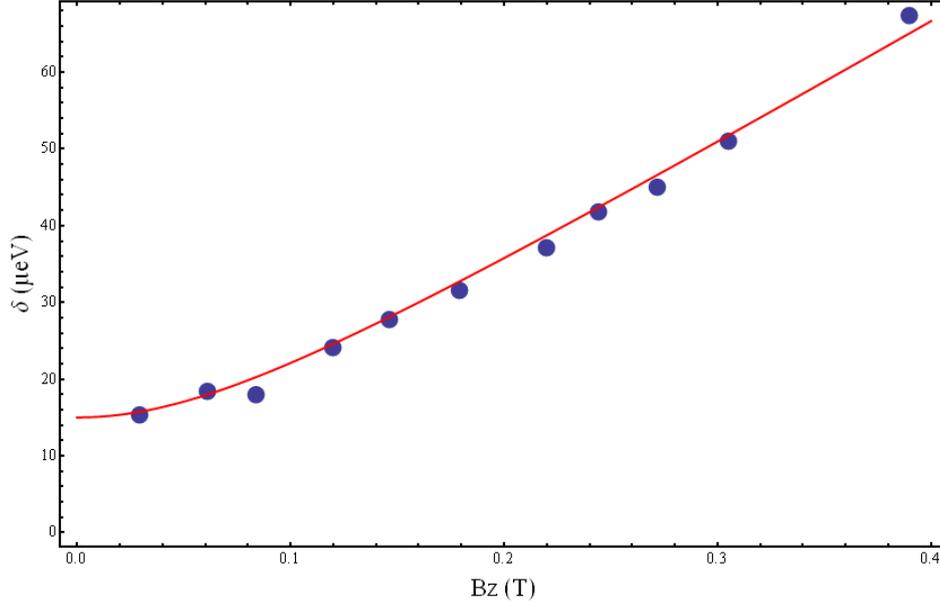


FIGURE 6.8 – Mesures de l'évolution de $\delta = \hbar\omega$ des battements quantiques avec le champ. Cette évolution est très bien ajustée par l'expression $\delta = \sqrt{\delta_1^2 + (\hbar\omega_L)^2}$, et permet d'obtenir les valeurs moyennes (pour l'ensemble de BQ) : $\bar{g}_z = 2,8$, et $\bar{\delta}_1 = 15 \pm 5\mu eV$.

[113] en collaboration avec Sénès et al.).

La valeur de l'énergie d'échange anisotrope δ_1 obtenue est faible comparée à celles mesurées dans la littérature, pour des BQ émettant à la même énergie [66, 8, 113, 6]. Ainsi, l'elliptisation des états propres est très rapide avec l'application du champ magnétique longitudinal, puisque celle-ci est gouvernée par le paramètre $\alpha = \frac{1}{2} \arctan \frac{\delta_z}{\delta_1}$; or on a : $\frac{\delta_z}{\delta_1} = 1$ pour $B_z \approx 85\text{mT}$. Les états propres $|E_{\pm}\rangle$ seront donc quasi-circulaires ($\alpha = 0.9(\pi/4)$), pour un champ $B_z \approx 500\text{mT}$, qui est proche du champ maximal appliqué dans notre expérience.

On souhaite maintenant étudier l'évolution de la phase des battements quantiques. Grâce à notre connaissance de la pulsation δ/\hbar , on va pouvoir représenter la trace temporelle de la réflectivité dans l'espace des phases $\Phi = \frac{\Delta t \delta}{\hbar}$. Les courbes sont maintenant représentées avec leur ajustement par l'expression de $R(\Delta t, \xi, X)$ (6.35), dans laquelle on fixe les valeurs de ξ et δ appropriées. Les deux seuls paramètres libres sont : le préfacteur permettant de prendre en compte l'amplitude totale du signal enregistré, et le T_2 .

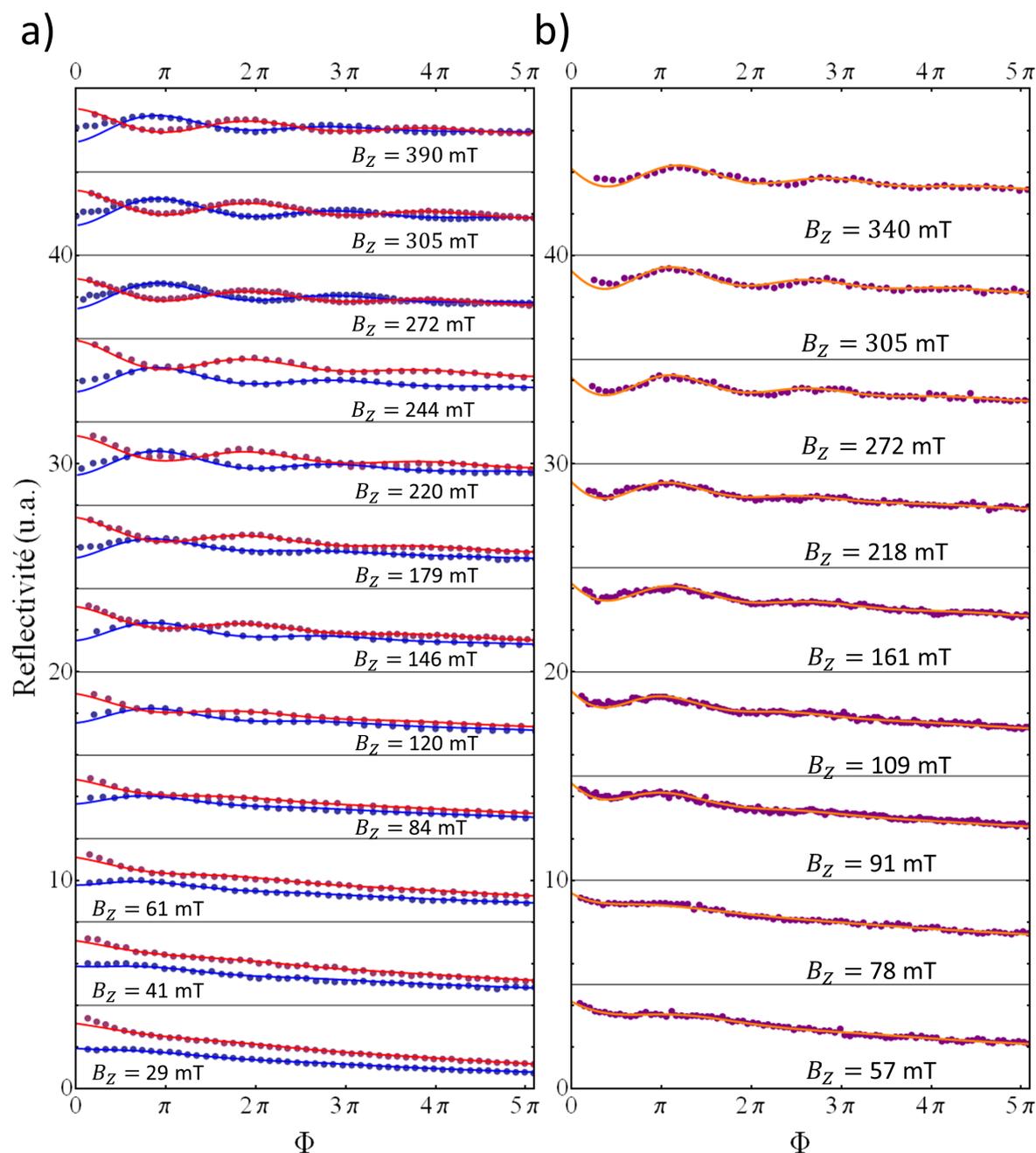


FIGURE 6.9 - Données expérimentales de réflectivité différentielle (sonde et référence co-polarisées suivant x), obtenues pour différents champs longitudinaux. a) Signaux $R(\Delta t, \xi = 0, X)$ (en rouge), et $R(\Delta t, \xi = \pi/2, X)$ (en bleu). La pompe est polarisée suivant $\xi = 0, \pi/2$. b) $R(\Delta t, \xi = \pi/4, X)$. Les données sont représentés en fonction de leur phase : $\Phi = \frac{\Delta t \delta}{\hbar}$. Les lignes sont les ajustements réalisés avec l'expression (6.35), avec les \bar{g}_z et $\bar{\delta}_1$ obtenus précédemment.

On peut voir que pour les trois configurations de polarisation $\xi = 0, \pi/2, \pi/4$, l'ajustement reproduit extrêmement bien : la phase à l'origine $\Psi(\xi, \alpha)$ d'une part et l'amplitude relative du terme cohérent (décroissant en T_2 et τ_{rad}) et du terme de popu-

lation (décroissant en τ_{rad}) du signal. Cette adéquation avec les données expérimentales est une confirmation solide de la validité du modèle.

6.2.3 Estimation du T_2

L'observation des battements quantiques est cependant gênée par leur amortissement rapide, en un temps T_2 ¹⁴. Notre étude se faisant sur un ensemble de BQ, cet amortissement va être dépendant des inhomogénéités des BQ, et donc des paramètres δ_1 et g_z , qui provoquent le déphasage des battements de leurs termes cohérents. On va pouvoir estimer la dispersion de ces paramètres sur l'ensemble de BQ étudié grâce à la dépendance en champ de $1/T_2$, représentée sur la figure 6.10.

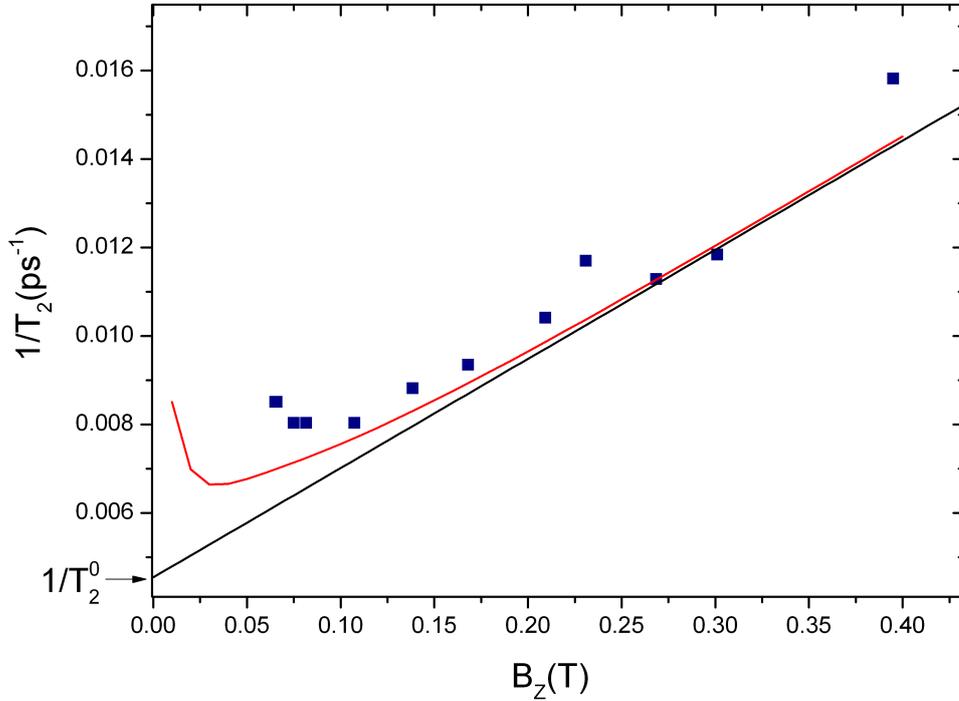


FIGURE 6.10 – Évolution du taux d'amortissement ajusté $1/T_2$ en fonction du champ. On représente l'ajustement réalisé grâce à l'équation 6.40, en rouge. Pour les champs importants, $B_z > 150\text{mT}$, l'évolution linéaire montre que la distribution est dominée par une dispersion de g_z , distribué sur une lorentzienne de largeur : $\Gamma_g = 0.31$. La dispersion de δ_1 provoque un épaulement du T_2 , qui diminue à champ nul. Cette évolution est ici reproduite avec $\Gamma_1 = 3 \mu\text{eV}$. Dans cet ajustement, on utilise un temps de cohérence homogène : $T_2^0 = 310 \text{ ps}$.

Sous l'hypothèse raisonnable que les paramètres δ_1 et g_z sont décorrélés et suivent des densités de probabilité Lorentziennes $L_{\delta_1}^{\Gamma_1}$ et $L_{g_z}^{\Gamma_g}$, de valeur centrale $\bar{\delta}_1$

14. Il faut bien différencier ce temps T_2 de la cohérence des états excités, du temps T_2 souvent mesuré entre un des états excités et l'état vide (qui va gouverner la décroissance des oscillations de Rabi).

(resp. \bar{g}_z), et de demi-largeur à mi-hauteur Γ_1 (resp. Γ_g); le signal de battement quantique pour l'ensemble de BQ, pour une excitation selon $\xi = \pi/2$, s'obtient en intégrant ces distributions :

$$e^{\frac{-\Delta t}{\tau_{rad}}} e^{\frac{-\Delta t}{T_2^0}} \iint \sin^2(2\alpha) \cos\left(\frac{\Delta t \delta}{\hbar}\right) L_{\delta_1}^{\Gamma_1} L_{\bar{g}_z}^{\Gamma_g} d\bar{g}_z d\delta_1 \quad (6.40)$$

où T_2^0 est le temps de cohérence du battement quantique pour une BQ¹⁵ unique, et où il faut prendre en compte la dépendance de α et δ avec g_z et δ_1 . En intégrant numériquement ces dispersions, on peut approximer cette expression par : $e^{\frac{-\Delta t}{T_2}} [e^{\frac{-\Delta t}{\tau_{rad}}} \sin^2(2\bar{\alpha}) \cos(\frac{\Delta t \bar{\delta}}{\hbar})]$, et on peut déterminer les paramètres qui reproduisent au mieux les résultats expérimentaux. La dépendance clairement linéaire de $1/T_2$ pour $B_z > 150$ mT, observée sur la figure 6.10, montre que dans ce régime de champ la dispersion du facteur de Landé domine, et la pente qui est alors de $\mu_B \Gamma_g / \hbar$ permet de déterminer $\Gamma_g = 0.31$.

A contrario, pour les champs faibles (< 150 mT), c'est la dispersion de δ_1 qui domine et provoque un déphasage rapide, et la valeur $\Gamma_1 = 3 \mu\text{eV}$ est celle qui reproduit le mieux les résultats expérimentaux. Bien que faible, cette dispersion du δ_1 dans l'échantillon reste importante par rapport à sa valeur moyenne $\bar{\delta}_1 = 15 \mu\text{eV}$. C'est cette dispersion, couplée au facteur d'amplitude $\sin^2 2\alpha$ qui provoque le *coude* dans la fonction $1/T_2(B)$ (obtenue par intégration numérique, cf courbe rouge sur la figure 6.10). En effet, le facteur α est très dispersé à champ faible, et le facteur d'amplitude $\sin^2 2\alpha$ va favoriser les extrémités des distribution¹⁶, ce qui va les *élargir*, et provoquer une réduction du T_2 pour les champs faibles.

L'ajustement d'une énergie de structure fine δ_1 peu dispersée autour d'une valeur moyenne faible est surprenant à la vue de la littérature. Cependant, en plus de la courbe 6.8, le bon ajustement des amplitudes relatives des composantes exponentielles et oscillantes sur l'ensemble de la gamme de champ, nous confirme la valeur moyenne de $15 \mu\text{eV}$ ¹⁷. En sus, l'ajustement des données par une expression prenant en compte simplement les valeurs moyenne, indique une faible dispersion des paramètres d'intérêt. L'évolution, clairement linéaire, du $1/T_2$ pour $B_z > 150$ mT permet aussi de donner une borne supérieure $\Gamma_1 < 5 \mu\text{eV}$. Enfin, l'ajustement des données de la figure 6.10 est possible pour des valeur $\Gamma_1 \sim 5 \mu\text{eV}$, mais nécessite d'augmenter notre estimation de T_2^0 à des valeurs supérieures à 500 ps, plus improbables.

Un dernier facteur d'inhomogénéité à considérer, est la déviation des axes des états propres $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ par rapport aux axes cristallographiques. Cette déviation

15. Ce temps va lui aussi changer d'une BQ à l'autre selon, par exemple, leur environnement électrostatique.

16. α va être plus important pour les g_z fort et les δ_1 faible.

17. En effet, pour des valeurs de δ_1 plus importantes, l'augmentation de l'amplitude des oscillations (représentée sur la figure 6.7.a) serait bien plus *lente* avec l'augmentation du champ.

provient du mélange de bande (lourd-léger) du trou [120, 76], et peut prendre des valeurs importantes (plusieurs dizaines de degrés [65]). Cette dernière dispersion pourrait expliquer la qualité très faible des signaux de cohérence obtenus à champ nul (dans la configuration $R(\Delta t, \pi/4, Y)$, qui devrait nous permettre d'observer des battements même pour $\alpha = 0$), et non présentés ici. L'application d'un champ faible permet alors de restaurer en partie la symétrie circulaire des états propres, et donne de meilleures conditions d'observation. Cependant, cet effet n'est pas quantifiable par l'étude d'un ensemble de BQ.

Évolution du T_2 avec la température

Nous avons également étudié expérimentalement l'évolution du temps T_2 pour différentes températures, lorsqu'on applique un champ magnétique $B_Z = 250$ mT. Les résultats de l'expérience sont présentés sur la figure 6.11, pour des température comprises entre 15 et 80 K. On remarque que T_2 varie que faiblement pour $T < 40$ K, et reste ainsi limité par la dispersion de g_z . Puis lorsque la température dépasse 40 K, le T_2 décroît de façon exponentielle en fonction de $\frac{1}{T}$. On fait le choix de tracer $\ln(T_2) = f(1/T)$, afin d'analyser l'évolution en température dans le cadre d'une énergie d'activation :

$$T_2 = T_2(15K) \left(1 - \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right) \right) \quad (6.41)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, et E_a est une *énergie d'activation*.

L'ajustement de l'évolution de T_2 entre 40 et 80 K, permet d'estimer : $E_a = 10,3$ meV. Ainsi, lorsque l'énergie thermique $k_B T$ devient comparable à cette énergie, l'activation de nouveaux processus de décohérence va devenir possible, et faire chuter le T_2 . Cette énergie est trop faible pour correspondre à l'excitation de phonons optiques ($\hbar\omega_{TO} \sim 30$ meV), où à des excitations intra-bande des charges (~ 25 meV). Cependant, elle pourrait correspondre à l'interaction de la paire électron-trou avec le quasi-continuum des phonons acoustiques longitudinaux (*LA*) [42].

Enfin, notre ajustement permet de donner une estimation du temps de cohérence pour une BQ unique $T_2^0 = 220$ ps. Or, comme mentionné précédemment : $T_1^{xy} \gg \tau_{rad}$, et donc le T_2^0 *homogène* associé à la cohérence $X \leftrightarrow Y$ devrait lui aussi être long devant τ_{rad} . Cette valeur, relativement faible, nous indique que la décohérence à faible température est dominée par les termes de déphasage pur (dû à l'environnement de la BQ), et pourrait varier fortement d'une BQ à l'autre. La valeur 220 ps est cependant deux fois plus faible que celle déterminée par Tartakovskii et al. en 2004 [118] (une estimation qui pourrait être largement sous-estimée, car comparable au temps de vie mesuré dans cette équipe).

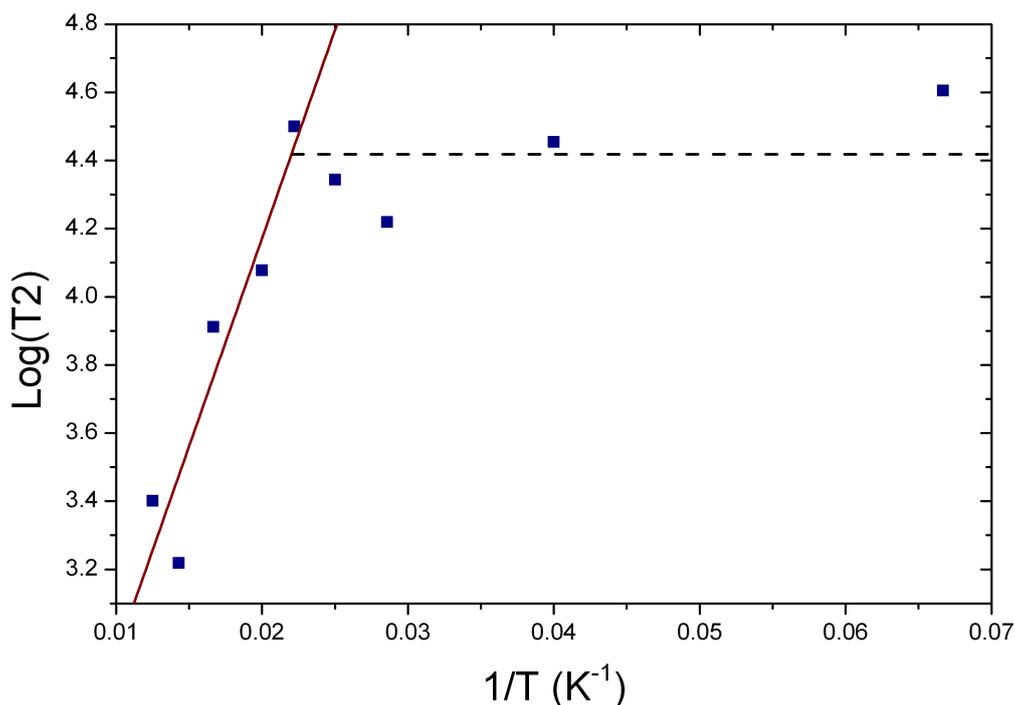


FIGURE 6.11 – Évolution du temps de cohérence T_2 ajusté pour des températures comprises entre 15 et 80 K, avec $B_Z = 250$ mT. On représente $\ln(T_2)$ en fonction de $1/T$, afin de mieux visualiser la dépendance $\exp(\frac{-E_a}{k_B T})$, due à l'activation thermique de phénomènes de décohérence. La droite rouge correspond à l'ajustement, des points entre 40 et 80 K, donnant $E_a = 10,3$ meV. Les pointillés noirs donnent la valeur moyenne entre 15 et 40 K.

6.2.4 Évolution de la phase des battements quantiques avec le champ magnétique

On remarque que la phase des données expérimentales est en parfait accord avec celle donnée par le modèle (et représentée sur la figure 6.7.b). La phase initiale Ψ des battements quantiques pour une excitation $\xi = 0$ (resp. $\xi = \frac{\pi}{2}$), est fixe et vaut $-\frac{\pi}{2}$ (resp. $+\frac{\pi}{2}$) quel que soit le champ, d'où leur opposition de phase bien visible sur la figure 6.9. La courbe présentant l'excitation $\xi = \frac{\pi}{4}$ est en quadrature de phase avec les deux premières, et présente une phase initiale nulle. Encore une fois, celle-ci n'évolue pas avec le champ¹⁸.

Cependant, l'excitation du système selon une polarisation linéaire qui n'est pas alignée avec un axe de symétrie des états propres, permet d'obtenir une dépendance

18. On peut donner une représentation graphique de cette invariance. En effet, les axes x , y , et $\xi = \pi/4$ vont être les axes de symétrie des états propres, dont l'évolution temporelle représentée dans le plan complexe ($|X\rangle, i|Y\rangle$) va suivre une ellipse. Lorsqu'on va exciter ces états suivant ces axes de symétrie, la phase relative de leurs évolutions temporelles reste identique quel que soit le champ. D'où l'absence d'évolution de la phase de leur cohérence.

de la phase initiale avec le champ (via le paramètre α). C'est le cas pour l'excitation $\xi = 5\pi/12$ ¹⁹, représentée sur la figure 6.12.

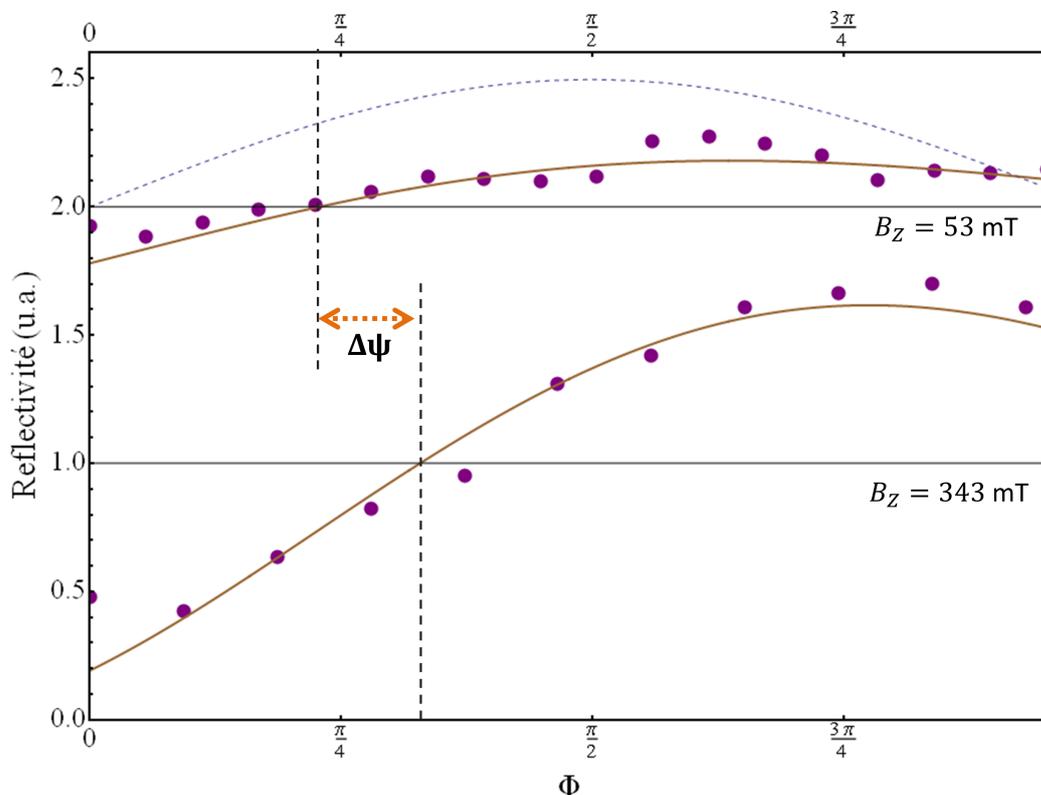


FIGURE 6.12 – Signaux $R(\Delta t, \xi = 5\pi/12, X)$ obtenus pour $B_z = 53 \text{ mT}$ et $B_z = 343 \text{ mT}$, représentés dans l'espace des phases, après soustraction de leurs composantes exponentielles (due aux termes de population). Les données (points violets) sont représentées avec leurs ajustements par le modèle (6.35), et décalées pour plus de clarté. Le croisement des ajustements avec l'abscisse montre leur décalage de phase $\Delta\Psi \approx \pi/8$. Afin de mettre en valeur ce décalage, on représente le battement quantique qui serait obtenu à $B_z = 0$, de phase $\Psi(5\pi/12, \alpha = 0)$, avec une amplitude fixée non-nulle (en pointillés bleu).

Malheureusement, l'évolution prévue de la phase $\Psi(5\pi/12, \alpha)$ se fait rapidement entre 0 et 100 mT, puis sature. Or pour ces mêmes champs, l'amplitude des battements quantiques reste faible. Afin de mieux visualiser l'évolution de la phase, on trace à titre de référence, la courbe présentant des battements quantiques ayant pour phase $\Psi(5\pi/12, \alpha = 0)$, où l'amplitude des battements quantiques est fixée *artificiellement* non-nulle. A nouveau, les données expérimentales sont très bien ajustées par le modèle ($R(\Delta t, \frac{5\pi}{12}, X)$), ce qui confirme l'évolution de la phase des battements quantiques. On remarque que le décalage de phase $\Delta\Psi$ induit par le champ magnétique

19. L'axe de polarisation permettant d'observer au mieux cet effet serait le long de $\xi = \pi/8$, comme le montre la figure 6.7.b, cependant à cause de la dé-polarisation induite par les réflexion sur les cubes, seul une polarisation $\xi = 5\pi/12 = 75 \text{ deg}$ nous permet de conserver un taux de polarisation $> 0,9$.

est faible sur la plage de champs étudiés ($\Delta\Psi \sim \frac{\pi}{8}$ entre 53 mT et 343 mT), mais que l'évolution de la phase par rapport à la courbe de référence ($\alpha = 0$) est supérieure à $\frac{\pi}{4}$. Une excitation polarisée le long d'un axe proche des axes de symétrie (ex. $\xi = \pi/50$), permettrait d'obtenir, avec un champ très faible, un déphasage de $\pi/2$ par rapport à la courbe à champ nul. Cependant, l'observation du déphasage reste gênée par l'amplitude quasi-nulle des battements quantiques pour les faibles champs, dans la configuration de détection associée à $R(\Delta t, \xi, X)$.

En conclusion, on voit que la configuration de réflectivité différentielle avec la polarisation du faisceau référence alignée à celle de la sonde $R(\Delta t, \xi, X)$ permet effectivement d'observer l'évolution des termes de population de la matrice densité et d'estimer le temps de vie radiatif τ_{rad} . Elle permet également d'observer des termes cohérents, et d'estimer l'énergie δ et le temps de cohérence T_2 , lorsque l'état $|X\rangle$ adressé par la sonde est une superposition des états propres elliptiques $|E_+\rangle$ et $|E_-\rangle$. Cependant, elle n'est pas très adaptée à l'observation de l'évolution de la phase des battements quantiques avec le champ, dont l'observation constitue une des principales innovations de ces expériences. Nous allons voir comment la deuxième configuration de signal $R(\Delta t, \xi, Y)$, est plus adaptée à l'observation des cohérences du système, et donc des battements quantiques.

6.3 Signal de réflectivité contra-polarisée et changement de phase des battements quantiques

Dans cette partie nous allons étudier l'autre configuration d'analyse de la détection hétérodyne. Le faisceau sonde est toujours polarisé suivant x , et donc le modèle établi précédemment pour le champ stimulé par son passage reste valide. Cependant la référence est cette fois polarisée perpendiculairement (suivant l'axe y), comme représenté sur la figure 6.4.c. On amplifie donc le champ stimulé polarisé suivant y .

Nous allons d'abord calculer le signal analysé par la détection synchrone (DS). Nous allons voir qu'il est a priori plus adapté à l'observation des cohérences du système mais qu'il présente une contribution supplémentaire, due à la déviation par rapport aux axes de polarisation idéaux. Puis nous présenterons les signaux obtenus dans cette configuration, et vérifierons leur adéquation au modèle. Nous nous intéresserons particulièrement à l'évolution de la phase de ces signaux. La contribution indésirable du signal rend ces expériences moins explicites que prévu initialement, cependant nous les présentons ici, par souci de complétude.

6.3.1 Expression du signal de réflectivité amplifié suivant y

Nous calculons dans ce qui suit le signal de réflectivité associé à la configuration de détection dans laquelle la référence est polarisée suivant y , soit perpendiculairement

à la sonde (cf. schéma 6.4.c). Dans cette configuration, le faisceau référence va amplifier le champ émit par les BQ polarisé suivant l'axe y . Ce champ existe, car comme on l'a vu à la fin de la partie 6.1.4, même si la sonde est polarisée suivant x , elle induit un dipôle $\langle d_y \rangle$, suivant y . L'intensité détecté est ensuite démodulée par la détection synchrone. Cependant, on observe expérimentalement que dans cette configuration, la référence n'amplifie pas uniquement l'émission stimulée des BQ. En effet, la prise en compte d'une faible déviation angulaire par rapport aux axes "idéaux", fait apparaître de nouveaux termes dans l'expression du signal. L'interférence optique va s'écrire :

$$\left[\vec{E}_s(t) + \vec{E}_{BQ}(t) \right] \cdot \vec{E}_{ref}(t) = \left[E_s^{env}(t) \begin{pmatrix} \cos \gamma_s \\ \sin \gamma_s \end{pmatrix} e^{i\omega_s t + \phi_s} + \begin{pmatrix} E_{BQ,X}^{env}(t) \\ E_{BQ,Y}^{env}(t) \end{pmatrix} e^{i\omega_s t} \right] \cdot E_{ref}^{env}(t) e^{i\omega_{ref} t} \begin{pmatrix} \cos \gamma_{ref} \\ \sin \gamma_{ref} \end{pmatrix} \quad (6.42)$$

où encore une fois $E_i^{env} = E_i^0 p(t)$, et l'enveloppe de l'impulsion $p(t)$ est lissée par le détecteur. Comme dans la configuration précédente (sonde et référence co-polarisées), le faisceau référence interfère : avec le champ émit par les BQ d'une part, et avec le champ sonde réfléchi à la surface de l'échantillon (qui acquiert une phase relative ϕ_s) d'autre part. Si on suppose les déviations angulaires θ_s (de la sonde avec l'axe x) et γ_{ref} (de la référence avec l'axe y , cf. schéma 6.13.b) petites devant 1, alors dans l'approximation des petits angles, les termes à la pulsation $\omega_s - \omega_{ref}$ s'écrivent :

$$\left[(\gamma_s - \gamma_{ref}) E_s^{env,*}(t) E_{ref}^{env}(t) e^{i\phi_s} e^{i(\omega_{ref} - \omega_s)t} + E_{BQ,Y}^{env}(t) E_{ref}^{env,*}(t) e^{i(\omega_{ref} - \omega_s)t} \right] + c.c. \quad (6.43)$$

Le signal intégré par le détecteur puis filtré par la DS à $\omega_s - \omega_{ref}$, sera alors :

$$S_1(t) \propto |E_{ref}^0| \left| (\gamma_s - \gamma_{ref}) E_s^0 e^{i\phi_s} + E_{BQ,Y}^0 \right| \quad (6.44)$$

Comme $E_s^0 \gg E_{BQ}^0$, le deuxième terme de cette équation peut s'écrire :

$$\left| (\gamma_s - \gamma_{ref}) E_s^0 e^{i\phi_s} + E_{BQ,Y}^0 \right| \simeq |\gamma_s - \gamma_{ref}| |E_s^0| + \frac{\Re \left[(\gamma_s - \gamma_{ref}) E_s^{0*} e^{-i\phi_s} E_{BQ,Y}^0 \right]}{|\gamma_s - \gamma_{ref}| |E_s^0|} \quad (6.45)$$

Le premier terme $|\gamma_s - \gamma_{ref}| |E_s^0|$, n'est pas modulé à la fréquence de la pompe, et va donc être coupé par le deuxième étage de la DS. En revanche le deuxième terme contenant $E_{BQ,Y}$ (le signal qui nous intéresse), est modulé à la fréquence de la pompe et sera conservé. Cependant, la phase ϕ_s va jouer sur l'amplitude relative des parties réelles et imaginaire de $E_{BQ,Y}$. Lorsqu'on utilise l'expression de $E_{BQ,Y}$ obtenue à partir du dipôle obtenu exprimé par l'équation (6.30), on obtient l'expression finale du signal de réflectivité différentielle (avec la référence suivant y) :

$$R(\Delta t, \xi, Y) = \frac{\gamma_s - \gamma_{ref}}{|\gamma_s - \gamma_{ref}|} \left(\begin{aligned} & \cos \phi_s \cos 2\xi \sin 2\alpha \cos 2\alpha e^{-\Delta t / \tau_{rad}} & (6.46) \\ & + e^{-\Delta t / T_2} \left[\left(\sin \phi_s \sin 2\xi - \cos \phi_s \cos 2\xi \sin 2\alpha \cos 2\alpha \right) \cos \left(\frac{\Delta t}{\hbar} \right) \right. \\ & \left. + \left(\sin \phi_s \cos 2\xi \sin 2\alpha + \cos \phi_s \sin 2\xi \cos 2\alpha \right) \sin \left(\frac{\Delta t}{\hbar} \right) \right] \end{aligned} \right)$$

où on omet un pré-facteur d'amplitude. Dans cette expression, la phase ϕ_s se retrouve mélangée aux autres paramètres extrinsèques (ξ et α) de notre système. La phase des battements quantiques va maintenant être une fonction complexe des trois paramètres, $\Psi_Y(\phi_s, \xi, \alpha)$.

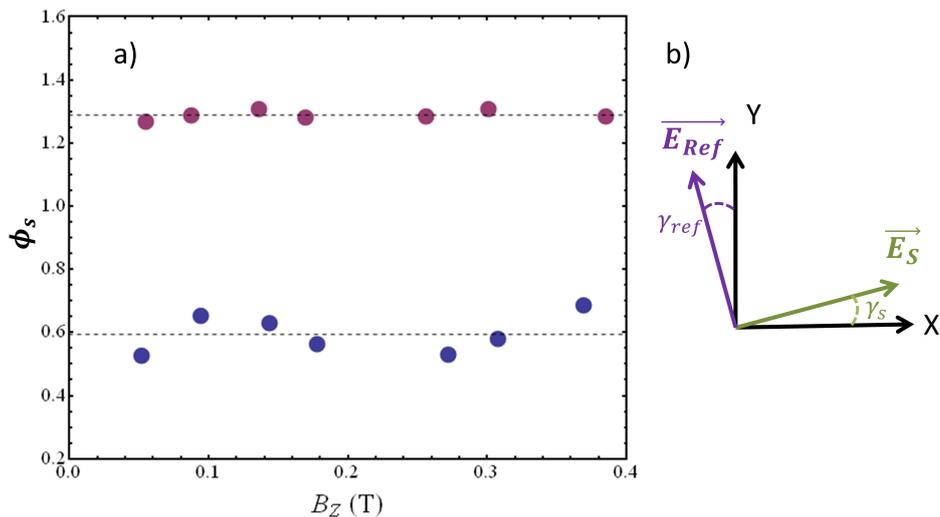


FIGURE 6.13 – a) Phase Φ_s ajustée à partir des deux ensembles de données expérimentales ($\xi = \pi/4, 7\pi/12$). Les variations faibles de Φ_s entre les différents champs (pour des conditions d'excitation fixes) correspondent à l'incertitude de l'ajustement. Pour les ajustements présentés dans la suite, Φ_s est fixé à sa valeur moyenne. b) Schéma représentant la configuration de détection avec sonde et référence croisées, et les déviations angulaires γ_s et γ_{ref} , résultant dans le signal $R(\Delta t, \xi, Y)$

Ainsi, on remarque que les faibles déviations γ_s et γ_{ref} provoquent un décalage du "point de fonctionnement" de la détection, ce qui rend notre signal sensible à un paramètre supplémentaire ϕ_s . Cependant, l'ajustement des signaux par la formule (6.46), nous permet de déterminer que pour une série d'expériences (à ξ fixe), la phase ϕ_s est fixe (voir figure 6.13). Ceci implique que le trajet optique entre le plan de BQ et la surface de l'échantillon varie faiblement par rapport à λ ²⁰. Les faibles variations de ϕ_s (obtenues pour deux configurations d'excitation différentes) nous permettent de confirmer la validité de l'expression (6.46), par l'ajustement de nos signaux.

6.3.2 Résultats expérimentaux

La configuration de signal $R(\Delta t, \xi, Y)$ permet de détecter un signal plus faible (qu'on amplifie dix fois plus que $R(\Delta t, \xi, X)$), cependant on remarque dans son expres-

20. La dilatation thermique de l'échantillon ne provoque que des variations d'épaisseur sub-nanométrique. Cependant, la différence de polarisation d'excitation, provoque une différence de ϕ_s pour les deux ensembles de données ajustés.

sion que les termes cohérents (produisant les battements quantiques) ont une amplitude relative plus importante que les termes de populations (produisant l'exponentielle associée au déclin radiatif). En effet, de façon réciproque à l'autre configuration, le terme exponentielle est ici nul lorsqu'on applique pas de champ, et croît avec l'application de celui-ci.

Entre autres, la configuration $\xi = \pi/4$ doit permettre d'observer uniquement les battements quantiques quelque soit le champ, et même à champ nul. Cependant, pour les raisons détaillées précédemment (cf. paragraphe sur l'estimation du T_2), et notamment la dispersion angulaire des états linéaire $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, le signal à champ nul est très bruité, et ne permet pas de résoudre directement δ_1 . Nous présentons donc (sur la figure 6.14) les signaux obtenus expérimentalement pour $\xi = \pi/4$ et $\xi = 7\pi/12$, sous différents champs magnétiques B_z . On notera qu'on a retranché le terme en $e^{-\Delta t/\tau_{rad}}$ (dont l'amplitude était cependant bien reproduite par le modèle), des courbes obtenue avec $\xi = 7\pi/12$, afin de mieux percevoir la variation de la phase Ψ_Y .

Les données expérimentales sont bien reproduites par l'expression (6.46). Encore une fois, seuls deux paramètres sont variables, T_2 et l'amplitude du signal (ϕ_s est fixé grâce à une première série d'ajustements, qui permet de déterminer sa valeur moyenne cf. figure 6.13).

On remarque qu'une polarisation $\xi = \pi/4$ de la pompe produit des battements dont la phase est sensible au champ magnétique, contrairement à l'étude réalisée dans la configuration précédente $R(\Delta t, \xi = \pi/4, X)$. Ainsi, la configuration de détection peut influencer non seulement sur la phase des battements quantiques observés, mais aussi sur l'évolution de cette phase avec le champ appliqué. La polarisation $\xi = 7\pi/12$ permet aussi l'observation d'un déphasage dépendant du champ, illustré sur la figure 6.15 pour les deux champs extrêmes.

Si l'amplitude des oscillations (plus importante que dans la configuration précédente) facilite son observation, le déphasage maximal observé reste cependant faible ($\approx \frac{\pi}{8}$). Néanmoins, son évolution ne suit pas une loi saturant rapidement en δ_Z/α , et offre de nouvelles possibilités pour faire évoluer la phase sur une gamme de champs magnétiques plus large. Malheureusement, cette évolution est dépendante d'un paramètre extérieur ϕ_s , difficilement contrôlable.

Cette étude complémentaire, où la référence est contra-polarisée avec la sonde, nous a permis de confirmer le résultat obtenu dans la partie 6.2 : l'application d'un champ magnétique longitudinal permet bien de provoquer un déphasage des battements quantiques dus à la structure fine de la paire électron-trou de la BQ. Bien que ce déphasage reste faible avec notre dispositif expérimental, il offre des possibilités de manipulation intéressantes en vue de la réalisation d'un Qbit. L'observation d'une telle manipulation de la phase sur une BQ unique serait un pas supplémentaire dans cette direction, permettant de s'affranchir des déphasages induits par les inhomogénéités et ainsi l'observation du *vrai* temps de cohérence des battements quantiques. L'observa-

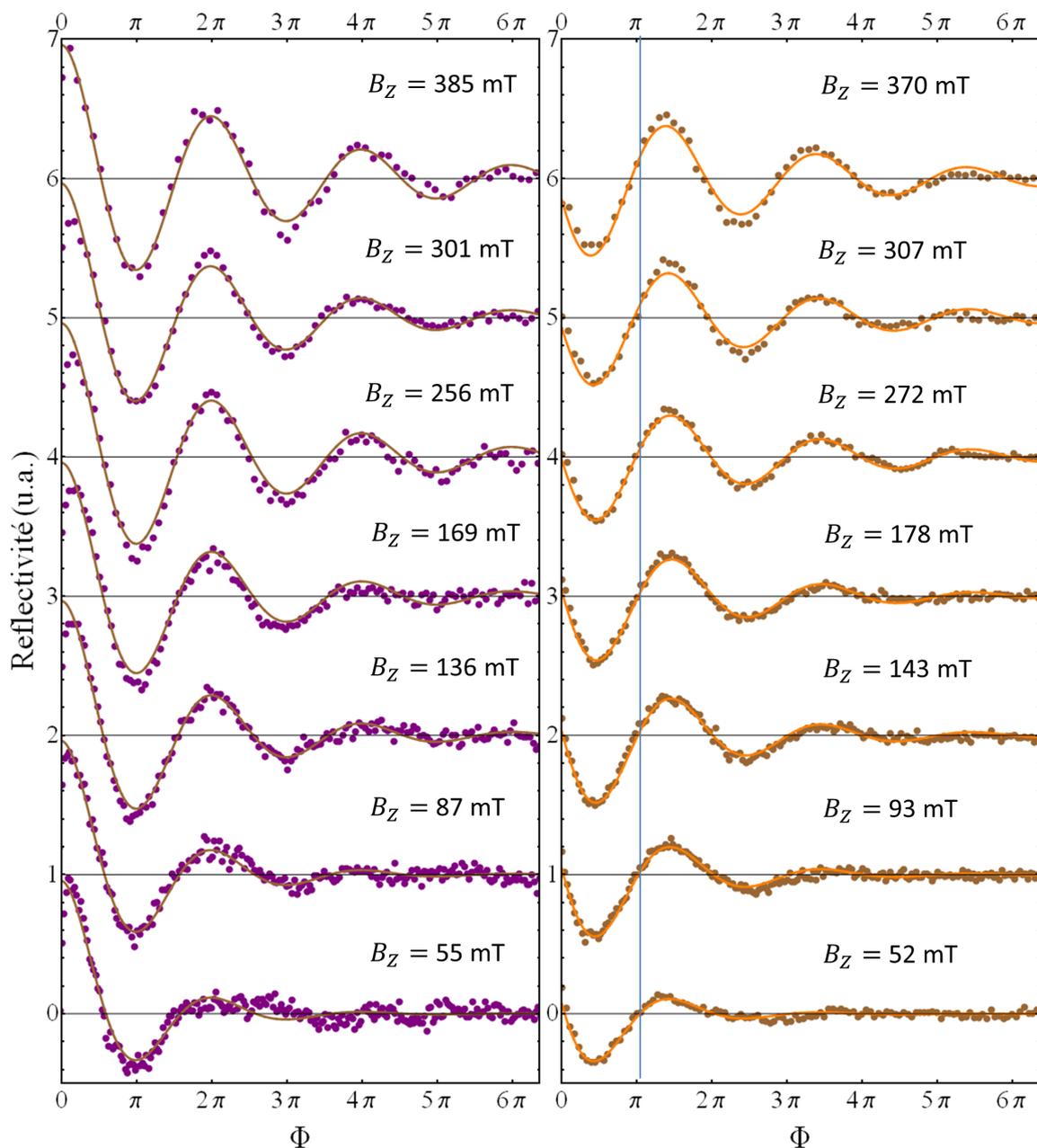


FIGURE 6.14 – Signal $R(\Delta t, \xi, Y)$, obtenu pour $\xi = \pi/4$ (panneau gauche), et $\xi = 7\pi/12$ (panneau droit), représenté dans le domaine de phase des battements quantiques. On a retranché le signal $\propto e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{rad}}}$ des courbes $R(\Delta t, \xi = 7\pi/12, Y)$, afin de mieux visualiser le décalage de la phase. Les expériences sont bien ajustées par le modèle (même en fixant le paramètre Φ_s).

tion du signal de réflectivité d'une BQ unique sera donc la motivation de la partie qui suit.

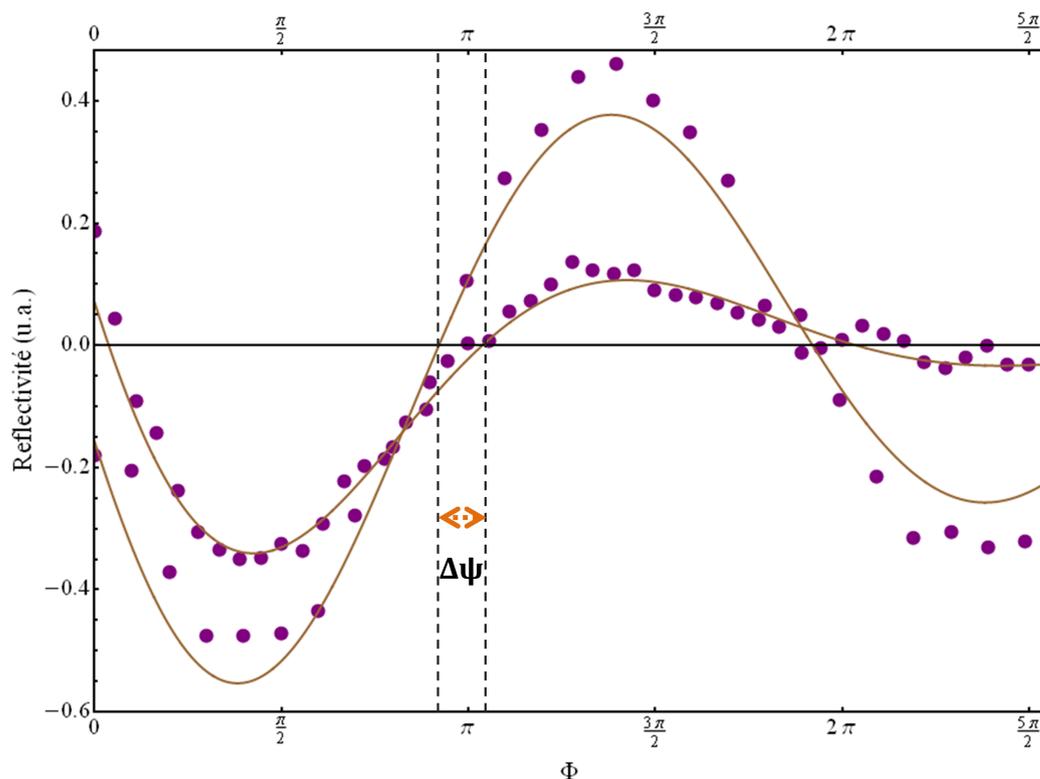


FIGURE 6.15 – Signal ajusté par $R(\Delta t, \xi = 7\pi/12, Y)$ pour les champs extrêmes 52 mT et 370 mT. Les données expérimentales sont bien ajustées par le modèle. On observe un décalage de phase $\sim \frac{\pi}{8}$ entre les deux champs.

6.4 Signal de réflectivité sur une BQ unique, et effets de charge

Le modèle développé dans la section précédente est appliqué à un ensemble de BQ, mais il est aussi valable pour une BQ unique. Lors des derniers mois de cette thèse, la sensibilité de notre expérience nous a permis de réaliser quelques expériences sur une BQ unique. Dans cette section, nous présenterons les caractéristiques et la photoluminescence de l'échantillon de faible densité utilisé, ainsi que les premiers résultats de réflectivité différentielle obtenus sur une BQ unique. Nous verrons comment ces résultats illustrent les possibilités et les limitations actuelles de l'expérience, ainsi que ses perspectives futures.

6.4.1 Échantillon et micro-photoluminescence

Les échantillons étudiés précédemment ne permettent pas d'adresser une BQ unique à la résonance avec notre laser. Dans cette section, nous étudions un échantillon dont la densité surfacique de BQ est *cent fois plus faible* que dans les échantillons précédents. L'échantillon D2T112 possède une densité de BQ non-dopées de

$n = 10^8 \text{ cm}^{-2} = 1 \mu\text{m}^{-2}$, et une cavité planaire (12-24), d'un facteur de qualité relativement faible $Q \sim 700$. Nous allons d'abord étudier la micro-photoluminescence de cet échantillon (cf. figure 6.16).

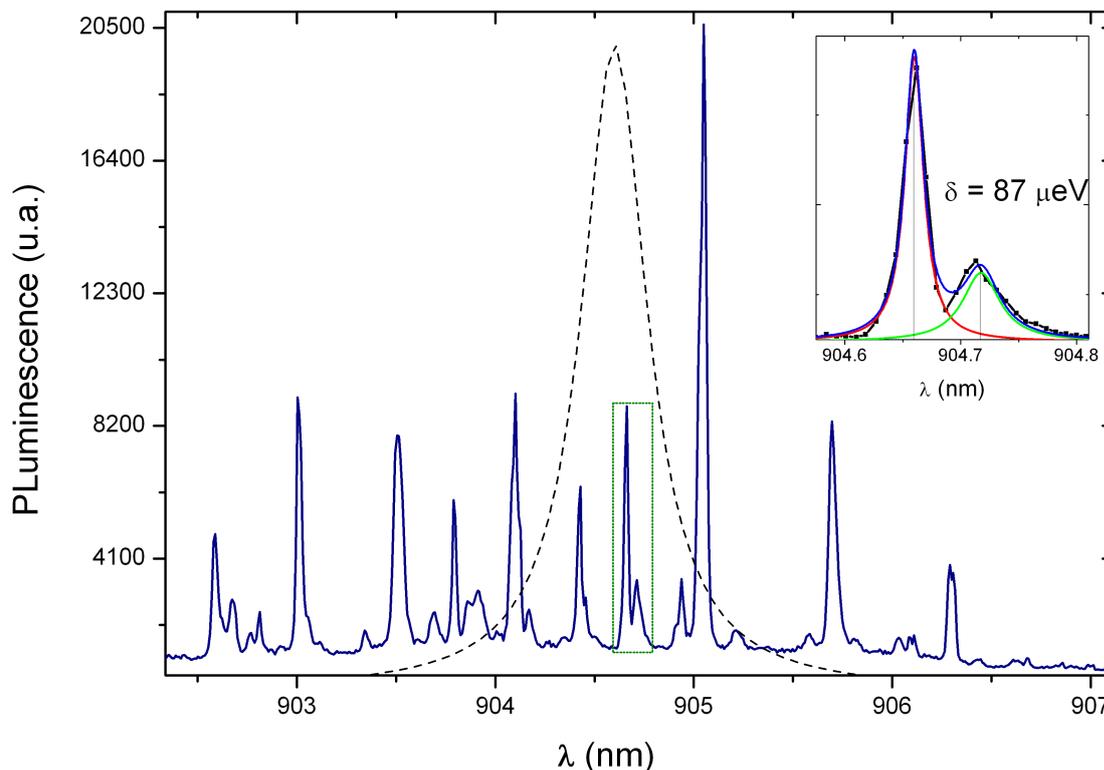


FIGURE 6.16 – Photoluminescence de l'échantillon D2T112, excité à 635 nm, soumis à un champ magnétique longitudinal $B_Z = 340 \text{ mT}$. Il y figure un nombre de pics limités. Certains pics sont dédoublés, ce qui provient certainement des raies X et Y de l'exciton neutre. L'écart entre les pics peut être ajusté par un double lorentzien (voir encadré), ce qui permet d'estimer leur écart énergétique δ . Le profil spectral typique du laser impulsionnel utilisé pour l'étude de la dynamique est représenté en pointillé.

La photoluminescence des BQ est excitée de façon non-résonante via un laser rouge ($\lambda_{\text{rouge}} = 635 \text{ nm}$), qui excite des porteurs dans la barrière de GaAs. Après la capture de ces porteurs par les BQ, on détecte leur émission radiative. Cette émission va être amplifiée par la micro-cavité dans laquelle elles sont insérées. Cependant l'influence de celle-ci sera moindre, du fait de sa largeur spectrale importante (et donc de son faible facteur de qualité Q). Enfin, la déformation de la luminescence due au couplage de la cavité avec l'objectif sera moins importante que pour l'échantillon 62H18.

La faible densité de l'échantillon nous permet ici d'observer des raies discrètes associées aux différentes transitions des BQ. Pour une BQ donnée, l'excitation non-résonante permet d'observer différentes raies (XX, X^+, X^-), et surtout le doublet de raies X et Y associées à l'exciton neutre (X^0), et polarisées linéairement. La photoluminescence

de l'échantillon D2T112 est représentée sur la figure 6.16. Si on observe le doublet X/Y, la différence d'énergie δ_1 peut être obtenue précisément par l'ajustement d'une double lorentzienne (de même largeur, limitée par le pouvoir de dispersion du spectroscope), comme représenté dans l'encadré de la figure 6.16. Le nombre restreint de mesures (une dizaine) dont nous disposons actuellement, indique que la différence d'énergie δ , pour un champ magnétique $B_Z = 340$ mT, est équi-répartie entre 0 et $200 \mu\text{eV}$.

En réglant le laser à la résonance du doublet de transitions d'une des BQ (celle émettant à $906,3$ nm sur le spectrogramme 6.16²¹), nous allons maintenant étudier le signal de réflectivité obtenu grâce à l'expérience pompe-sonde, avec une BQ unique.

6.4.2 Réflectivité différentielle d'une BQ unique

A ce jour, peu de dispositifs présentés dans la littérature permettent de réaliser des mesures pompes-sondes sur une BQ unique. A notre connaissance, seules les expériences de Stievater en 2001 [115], et de Awschalom en 2005 [13] ont pu observer la rotation Kerr résolue en temps (avec une résolution temporelle faible ~ 1 ns), d'une BQ unique. Cependant les objets étudiés étaient des BQ de GaAs de fluctuations d'interface, émettant dans le rouge ($E \sim 1,6$ eV), et ayant une force d'oscillateur (et donc un couplage avec le laser sonde) bien plus élevé que les BQ de InAs. Enfin, une autre approche a été développée dans l'équipe de L. Lanco, où le couplage important d'une BQ d'InAs avec une cavité micro-pilier de fort facteur de qualité ($Q \sim 2300$), permet d'amplifier la rotation Kerr induite par la BQ, jusqu'à obtenir des rotations Kerr *macroscopiques* de plusieurs degrés, dans un régime d'excitation continue [4]. Notre expérience se situe dans un cadre complémentaire, car on se propose d'étudier, grâce à une excitation pulsée, une BQ unique faiblement couplée à une cavité, mais d'amplifier *optiquement* (grâce à la détection hétérodyne), le champ émit par la BQ²².

On accorde cette fois la longueur d'onde du laser à celle de la BQ qu'on souhaite étudier. Cependant, l'obtention d'un signal n'est pas garantie, car dans les faits peu de BQ peuvent être excitées à la résonance par le laser [96, 122], moins de 10% selon notre étude. Ainsi, même si l'enveloppe spectrale du laser recouvre l'énergie d'émission de plusieurs BQ (cf. figure 6.16), il est raisonnable d'estimer qu'une seule tout au plus va participer au signal à la résonance.

De plus, il a été observé que la luminescence d'une BQ est influencée par son environnement électrostatique [96, 99]. En effet, la croissance SK provoque la formation de défauts cristallographiques [79], qui vont se comporter comme des pièges électrosta-

21. Comme nous allons le voir par la suite, les BQ présentant le meilleur signal à la résonance ne sont pas nécessairement celles présentant la photo-luminescence la plus intense lors d'une excitation non-résonante.

22. On notera que cette approche a déjà été proposée par Mitsumori et al. en 2011 [95]; cependant leur expérience portait, encore une fois, sur une BQ de GaAs.

tiques, capables de capturer des porteurs de la bande de valence du GaAs. La présence de ces charges induit un champ électrique à proximité de la BQ, ce qui peut changer, via l'effet Stark, l'énergie des transitions de celle-ci [65], ou encore sa charge, via des phénomènes de capture tunnel [99]. Il a été montré que pour une BQ donnée, l'environnement électrostatique pouvait changer lors de chaque mise à froid de l'échantillon [99], et qu'il était possible de repérer la position des charges (grâce à des simulations monte-carlo de l'effet Stark qu'elles provoquent [60]). Ainsi, simultanément à nos expériences pompes-sondes, nous appliquerons sur l'échantillon un laser continu rouge de très faible puissance ($P_{rouge} \sim 10$ nW), qui permet de stabiliser cet environnement électrostatique, sans pour autant provoquer de luminescence détectable des BQ. Les résultats de l'expérience sont présentés sur la figure 6.17. La boîte quantique est excitée à la résonance de la paire électron-trou X^0 (à 906,3 nm), les puissances des faisceaux pompe et sonde sont respectivement : $2 \mu W$ et 100 nW, et la sonde et référence sont polarisées suivant x .

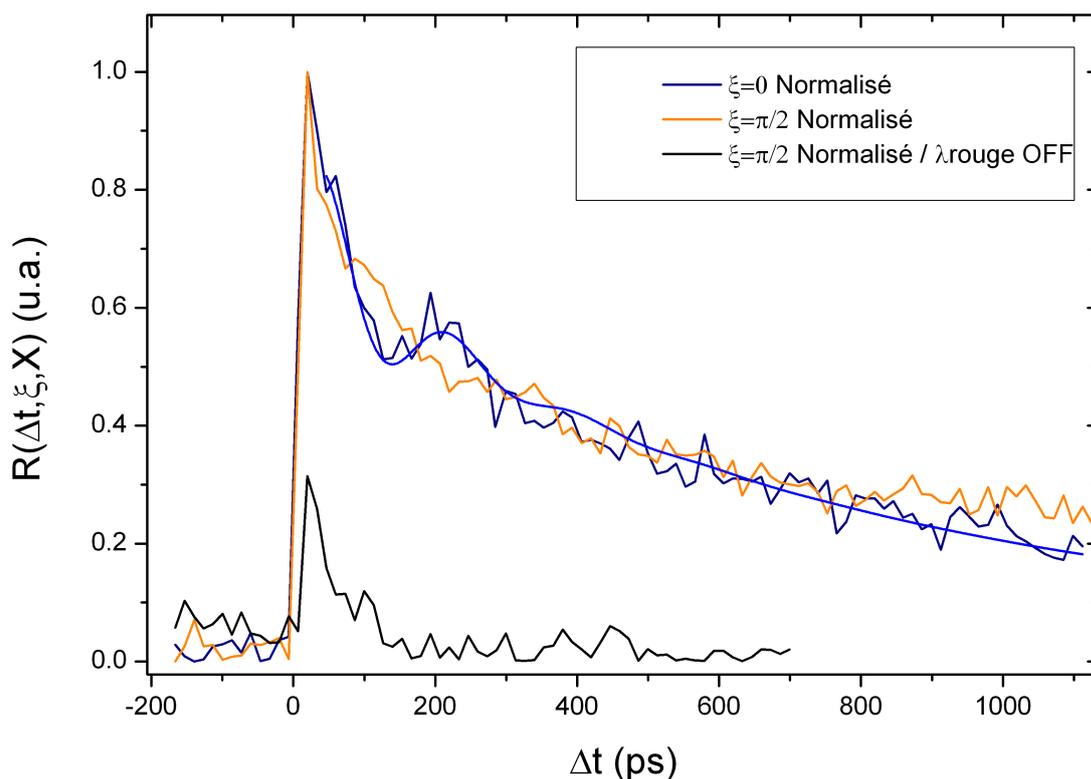


FIGURE 6.17 – Signal de réflectivité différentielle $R(\Delta t, \xi, X)$ obtenu à la résonance X^0 ($\lambda = 906,3$ nm) d'une unique BQ, soumise à un champ $B_Z = 400$ mT. L'ajustement de la trace temporelle permet d'obtenir le temps radiatif $\tau_{rad} = 670$ ps, et l'écart d'énergie $\delta = 30 \mu eV$. L'extinction du laser rouge provoque une chute brutale du signal (courbe noire), réversible lorsqu'on rallume le laser.

Le signal de réflectivité différentielle, présenté sur la figure 6.17, est obtenu lorsque la polarisation de la sonde et de la référence sont alignées suivant x , on observe

donc $R(\Delta t, \xi, X)$. Le niveau de bruit actuel de l'expérience ne permet pas d'appliquer de façon précise le modèle établi précédemment. Cependant on peut ajuster la composante exponentielle du signal afin d'obtenir $\tau_{rad} = 670$ ps, et sa composante oscillante, qui donne $\delta \approx 30 \mu\text{eV}$ pour cette BQ. La valeur $30 \mu\text{eV}$, se situe dans la limite basse des δ mesurés sur la photoluminescence, et correspond à un $g_X < 1,5$ (avec un champ appliqué $B_z = 400$ mT). Enfin on note que, bien que son évaluation soit compliquée, le T_2^0 (temps de cohérence quasi-homogène), des battements quantiques semble être ~ 200 ps, et donc proche de la valeur estimée dans la section 6.2.3.

On constate que la coupure du laser continu rouge provoque l'annulation (réversible) du signal, ce qui confirme l'hypothèse de l'importance de l'environnement électrostatique de la BQ. Ce comportement est compatible avec l'explication avancée par Nguyen en 2012 : un défaut à proximité de la BQ piège des trous (provenant d'un dopage résiduel de l'échantillon), qui vont rentrer par effet tunnel dans la BQ (avec une constante de temps \sim ms). La BQ sera alors chargée positivement, et on ne pourra pas adresser la transition excitonique X^0 à la résonance (mais seulement X^+). Le laser rouge permet de peupler la bande de conduction d'électrons qui peuvent être capturés par la BQ, et se recombiner avec le trou excédentaire. Le laser rouge nous permet ainsi de neutraliser la BQ, et d'adresser de façon intermittente la transition X^0 , afin d'obtenir un signal à la résonance.

Ce résultat prouve que la sensibilité de l'expérience permet l'étude d'une BQ unique. Malheureusement, sa faible stabilité mécanique, associée à l'absence de repaires bien visibles sur l'échantillon, empêche l'étude prolongée d'une même BQ dans l'état actuel de l'expérience.

6.5 Conclusion partielle

Dans ce chapitre nous avons présenté l'étude d'un ensemble restreint (~ 300) de BQ d'InAs/GaAs non dopées par des expériences pompe-sonde à détection hétérodyne. Nous avons commencé par décrire la structure fine des BQ, et sa modification par l'application d'un champ magnétique longitudinal. Nous avons ensuite traité l'excitation pompe, et l'évolution des dipôles électriques qu'elle induit. L'expression des signaux de réflectivité différentielle établie dans le cadre de la détection hétérodyne, correspond très bien aux signaux obtenus lors de nos expériences. Ces signaux nous ont permis de caractériser l'énergie de structure fine δ_1 et le facteur de Landé longitudinal g_X de l'exciton neutre dans notre échantillon, ainsi que leurs dispersions, qui influent sur le temps de déclin inhomogène T_2 des battements quantiques.

De plus, nous avons montré que conformément au modèle, l'application du champ magnétique produit un déphasage des battements quantiques observé, lors d'une excitation polarisée selon un axe qui n'est pas axe de symétrie du système. Ce résultat

a pu être vérifié lors de l'examen de la réflectivité contra-polarisée à la sonde (malgré l'introduction d'un paramètre en plus). Enfin, de derniers résultats obtenus sur un échantillon dilué, démontrent la sensibilité du dispositif, à la réflectivité différentielle d'une BQ unique.

Cette dernière réalisation offre un certain nombre de perspectives pour la suite des expériences. Certaines seraient réalisable dans un futur proche, comme une étude systématique du T_2^0 (quasi-homogène) de la cohérence $|X\rangle \leftrightarrow |Y\rangle$. Les deux estimations faites à ce jour (par notre étude et celle de Tartakovskii [118]) ont été réalisées sur des ensembles, et demeurent imprécises. De plus, une étude de ses variations d'une BQ à l'autre, pourrait mettre en lumière les mécanismes le limitant (là où sa valeur maximale serait $2T_1 \sim 15$ ns selon [65]).

Une autre étude réalisable, s'intéresserait à la dynamique des charges environnantes. Une modulation du laser rouge (à une fréquence f_r intermédiaire entre la fréquence hétérodyne et la fréquence pompe) permettrait, à partir de la dépendance du signal avec f_r , d'estimer les temps caractéristiques associés à leurs captures (et de confirmer le modèle établi par Nguyen et al. [100]). Lors de ces deux études, le couplage du dispositif pompe-sonde au dispositif de micro-photoluminescence serait un atout de taille.

À plus long terme, la validité du modèle développé dans ce chapitre, pourrait offrir la possibilité de manipuler la cohérence grâce à l'application rapide (~ 1 ps) de champs magnétiques (générés par des dispositifs spécifiques, comme celui proposé dans la référence [2]). Cette méthode de contrôle du qubit excitonique serait une voie complémentaire au contrôle par effet Stark optique (réalisé dans la référence [12]).

Conclusion

Au cours de cette thèse nous avons étudié des boîtes quantiques d'InAs/GaAs dopées p , afin de mesurer le temps limitant la cohérence de spin du trou, et d'observer les effets de polarisation nucléaire dynamique induits par les trions en champ transverse. Des modélisations et des simulations ont été réalisées pour corroborer les résultats expérimentaux, obtenus par des expériences pompe-sonde étudiant des ensembles ($\sim 10^4$) de boîtes quantiques. Un nouveau dispositif expérimental incluant une détection hétérodyne a été développé, et a permis l'étude d'ensembles de boîtes quantiques beaucoup plus restreints ($\sim 10^2$). Ces études d'ensembles de boîtes quantiques non dopées, ont permis d'une part l'observation de battements quantiques excitoniques, et d'autre part la mise en évidence d'un contrôle de la phase de ceux-ci par application d'un champ magnétique longitudinal.

Plus précisément, dans le chapitre 3, le blocage de phase de la précession de spin du trou a été mis en place grâce à la périodicité de l'excitation optique pulsée. Ce blocage de phase permet de sélectionner un sous-ensemble de boîtes quantiques participant au signal, en fonction du facteur de Landé g_h du trou, et ainsi de passer outre la forte inhomogénéité de ce paramètre au sein de notre échantillon (qui a été mesurée précisément). La caractérisation précise des paramètres de l'échantillon, a permis de confronter nos expériences à des simulations résolvant de façon formelle la dynamique de spin du trou, et d'estimer ainsi son temps de cohérence T_2 à 800 ns. Une expérience similaire, réalisée par une équipe concurrente, a (quasi simultanément) confirmé cette estimation [130]. Bien que cette valeur soit plus faible qu'espéré, l'intérêt expérimental pour la cohérence de spin du trou reste important [129, 58, 78, 56].

Dans le chapitre 4, nous avons étudié la polarisation nucléaire dynamique induite par le trion X^+ , dans des conditions expérimentales très proches (champ transverse, et blocage de phase) de celles du chapitre précédent. Bien qu'il soit difficile de quantifier la polarisation nucléaire avec un ensemble de boîtes quantiques, nos expériences peuvent être interprétées comme une nouvelle manifestation du phénomène observé par O. Krebs et al. en 2009 sur une boîte quantique unique [68]. Les expériences montrent la formation d'une polarisation nucléaire importante, et très vraisemblablement anti-parallèle au champ appliqué, ce qui inhibe la précession du spin électronique. Nous

observons aussi l'existence d'un champ critique ~ 400 mT, au-delà duquel cet effet est inopérant. Enfin, nous nous sommes intéressés aux dynamiques d'établissement et de destruction de la polarisation nucléaire, et nous avons donné les premières estimations des temps de construction longs (~ 400 ms) de la polarisation nucléaire dans les conditions d'excitation particulières de l'expérience.

Pendant cette thèse, nous avons également développé un nouveau dispositif, utilisant une détection hétérodyne, dont les caractéristiques et avantages sont présentés dans le chapitre 5. Ce dispositif a permis de réaliser des expériences sur des ensembles de boîtes quantiques plus restreints (~ 300); ces expériences sont présentées dans le chapitre 6. Les signaux de réflectivité différentielle obtenus, avec des boîtes quantiques non dopées, ont permis l'observation de la dynamique des populations, mais aussi celle des cohérences des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, induites par la structure fine excitonique. L'observation de battements quantiques, et la mesure des paramètres (δ_1, T_2, g_Z) les gouvernant ont pu être réalisés. Les résultats expérimentaux coïncident extrêmement bien avec le modèle développé, ce qui permet de mettre en avant le déphasage faible, mais contrôlable, des battements quantiques avec le champ appliqué.

Les derniers résultats présentés dans le chapitre 6 ont été obtenus par des expériences pompe-sonde sur des boîtes quantiques d'InAs/GaAs uniques; expérience à l'état de l'art (avec des impulsions pico-seconde), illustrant l'important gain de sensibilité permis par la détection hétérodyne. De nombreux progrès techniques restent à faire afin de tirer parti de ces capacités. D'une part sur le dispositif expérimental lui-même, comme la mise en place d'expériences dans un cryostat permettant l'application contrôlée de champs magnétiques importants (~ 9 T), une plus grande stabilité mécanique, et l'utilisation de nano-positionneurs piézoélectriques; et d'autre part sur le contrôle des échantillons: depuis leur croissance (et notamment le contrôle du dopage p pour des échantillons de faible densité), aux technologies associées (réalisation de masques et de structures Schottky de contrôle de la charge), en passant par une étude systématique de l'influence des différentes cavités sur le signal de réflectivité photo-induit.

La mise en place de ces améliorations permettrait la poursuite des études menées dans cette thèse à l'échelle d'objets uniques, et l'observation de signaux exempts de toutes contributions et amortissements inhomogènes (limitant les expériences menées jusqu'ici).

Tout d'abord, elle permettrait la poursuite des études du temps homogène T_2 de la superposition cohérente des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, encore peu étudié. L'étude de la dynamique, à l'échelle de la milliseconde, des signaux obtenus permettrait d'étudier le rôle perturbateur des charges à proximité de la boîte quantique, et de confirmer les modèles récemment proposés [99]. Des expériences sur une boîte quantique unique pourraient aussi permettre la mesure précise du T_2 homogène associé au spin d'électron

(ou de trou) confiné dans celle-ci. L'étude de ses variations avec l'environnement de la boîte quantique (charges et phonons), sur une gamme de champs magnétiques plus large et avec une plage temporelle plus longue (grâce à un *pulse picker* par exemple), permettrait de quantifier l'importance relative des nombreux phénomènes contribuant à la décohérence de spin.

L'observation des effets de polarisation nucléaire dynamique en champ transverse étudiés dans le chapitre 4, sur une boîte quantique unique, permettraient de corroborer la dynamique observée en pompe-sonde avec des mesures de micro-photoluminescence des écarts Overhauser, rendant ainsi les résultats plus complets et plus facilement comparables aux autres expériences. Des mesures sur différentes boîtes quantiques permettraient de juger de l'importance de la composition et de la forme de la boîte quantique dans les manifestations de tels phénomènes. Une telle étude pourrait être couplée à des mesures optiques de résonance magnétique, afin de distinguer les polarisations des spins nucléaires en différents points de la boîte quantique (grâce à la dépolarisation, sélective en direction et en énergie, produite par une excitation radio-fréquence résonante avec l'énergie des spins nucléaires [86]). On pourrait ainsi étudier l'interaction quadrupolaire dans les boîtes quantiques, qui a des effets importants sur la polarisation nucléaire, mais aussi sur la cohérence de spin du trou [55].

Une meilleure compréhension des phénomènes limitant la cohérence de spin, pourrait servir à la mise en place de protocoles de *découplage dynamique* (comme l'écho de spin [129]) plus efficaces, et qui permettraient d'allonger artificiellement les temps de cohérence, en annulant les effets du couplage aux spins nucléaires. À l'inverse, d'autres protocoles, comme celui développé dans la référence [56], pourraient se servir du couplage du spin électronique à une polarisation nucléaire bien établie pour sa manipulation. La maîtrise de la polarisation nucléaire pourrait alors devenir un avantage des boîtes quantiques, par rapport aux autres candidats pour la réalisation d'un qubit, en plus des protocoles de manipulations déjà mis en évidence (par effet Stark optique [12], ou par application d'un champ magnétique comme démontré dans ce manuscrit).

La mise en place de certaines de ces expériences, sur un dispositif à l'état de l'art en termes de résolution temporelle de la dynamique de spin dans les boîtes quantiques, ouvrirait de nombreuses possibilités d'études des phénomènes la régissant. La maîtrise et la manipulation du spin électronique ou de trou, couplés aux spins nucléaires, pourrait alors faire des boîtes quantiques un système de choix pour l'informatique quantique.

Annexe A : Extension des simulations de Modelock dans le contexte expérimental

Un certain nombre d'expériences utilisent des systèmes analogues (ensembles de BQ dopées n ou p), mais avec des paramètres différents (notamment sur les facteurs de Landé). Ceci leur permet d'utiliser des techniques proches des nôtres, et d'obtenir certains effets prédits par la théorie, mais qui ne sont pas visibles avec notre échantillon.

Allongement de la période du train d'impulsion

Pour commencer, l'expérience historique de Greilich et al. en 2006 utilise un *pulse picker*, afin d'allonger la période de répétition de l'excitation. Ils peuvent ainsi avoir accès à un intervalle de temps plus long $[0, 5 - 5] \mu s$, pour estimer le T_2 du spin électronique. La mise en place d'un tel dispositif nous aurait permis de générer une impulsion toutes les $t = T_L$, où $T'_L = n.T_L$. L'observation de l'amplitude de la réplique à $t = (T'_L)^-$ permet alors d'estimer le T_2^* avec plus de précision. Ces conditions utilisées dans la simulation permettent de produire les résultats de la figure 6.18.

Les simulations prédisent effectivement l'évolution exponentielle décroissante de l'amplitude des répliques, en T_2^* . La confrontation de ce modèle avec l'expérience associée permet une mesure d'une meilleure précision, car moins gênée par faible extension de la plage temporelle $T_L \ll T_2^*$. C'est la démarche utilisée dans la référence [129], qui estime la valeur $T_2 = 1,1 \mu s$ à 5K, valeur très proche de l'estimation obtenue grâce à nos simulations.

Techniques d'écho de spin

Mais l'expérimentateur peut être aussi confronté au problème inverse ($T_L \gg T_2^*$). En effet, la même équipe a mesuré en 2013 l'évolution du T_2 du spin du trou confiné dans une BQ d'InAs/GaAs, en fonction de la température[129]. Celui-ci chute rapidement à partir de 5K, pour atteindre la nanoseconde à 20K. Dans ce régime :

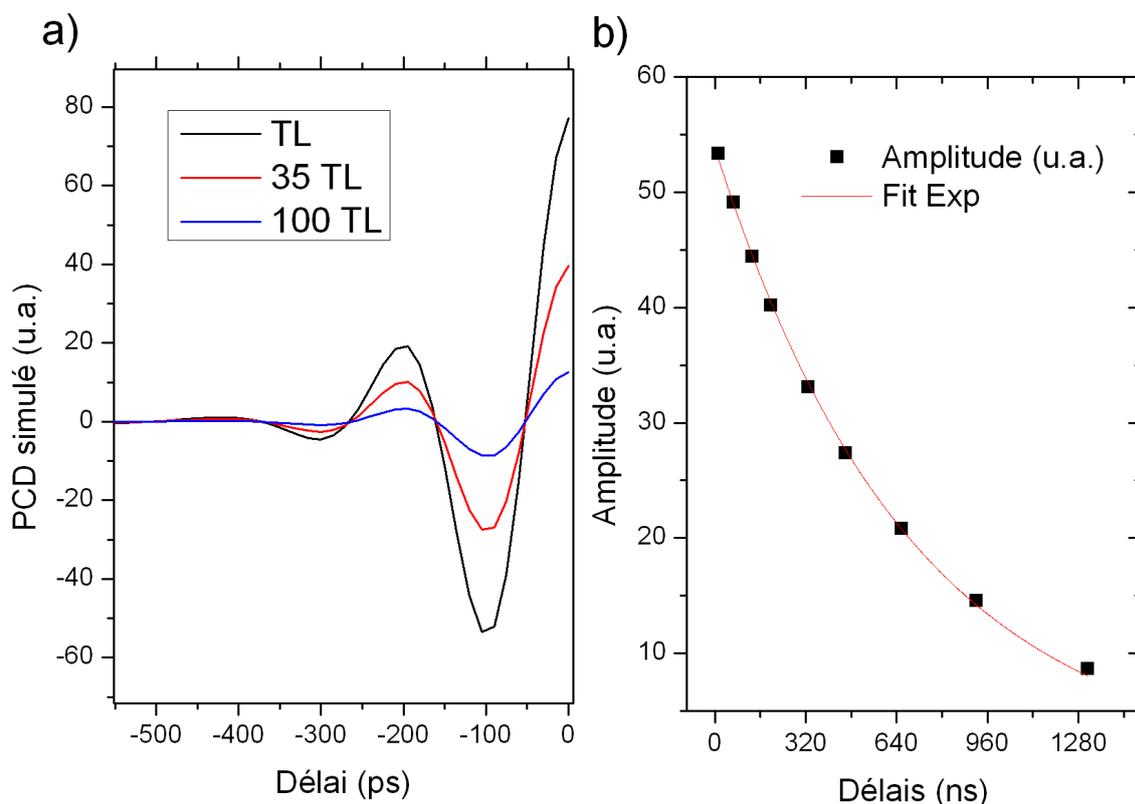


FIGURE 6.18 - a) Évolution simulée du PCD pour différents taux de répétition du laser, avec $B_x = 384\text{mT}$. b) Évolution de l'amplitude de la réplique avec le taux de répétition. Celui-ci présente une évolution exponentielle décroissante avec le taux de répétition T_L' , dont l'ajustement permet d'extraire $T_2 = 740\text{ ns}$.

$T_2^* \ll T_L$; et il est impossible de voir la réplique propre au blocage de phase (à $t = T_L^-$). De plus, le déphasage de l'ensemble de spins reste trop rapide pour estimer le T_2 homogène. Les auteurs font donc appel à une technique d'écho de spin²³.

En effet, l'absence de blocage de phase, et la faible dispersion du dipôle des BQs (et donc de l'angle de Rabi), permet au système de suivre quasi idéalement les équations de Bloch (3.19). Ainsi, une impulsion d'aire 2π , laisse les populations inchangées, et conjugue les cohérences. Ceci s'identifie à une symétrisation du spin par rapport au plan (zOx). L'arrivée d'une impulsion 2π à un délai τ après l'initialisation, inverse la dynamique du déphasage²⁴, et provoque une resynchronisation des spins à un délai 2τ .

Bien que ce résultat ne soit pas reproductible avec notre échantillon (à cause de la dispersion de θ , cf. figure 3.16), on peut le modéliser dans nos simulations où l'on omet d'intégrer la dispersion en θ . La figure 6.19 illustre les résultats des simulations,

23. Technique analogue à celle utilisée en RMN et IRM.

24. Les spins des BQs "en retard" par rapport au spin moyen se retrouve en avance, et vice-versa. Cependant, les fréquences de précession restent les mêmes. Donc les spins maintenant "en retard" vont rattraper le spin moyen, et les spins "en avance" vont perdre leur avance sur le spin moyen. D'où la resynchronisation.

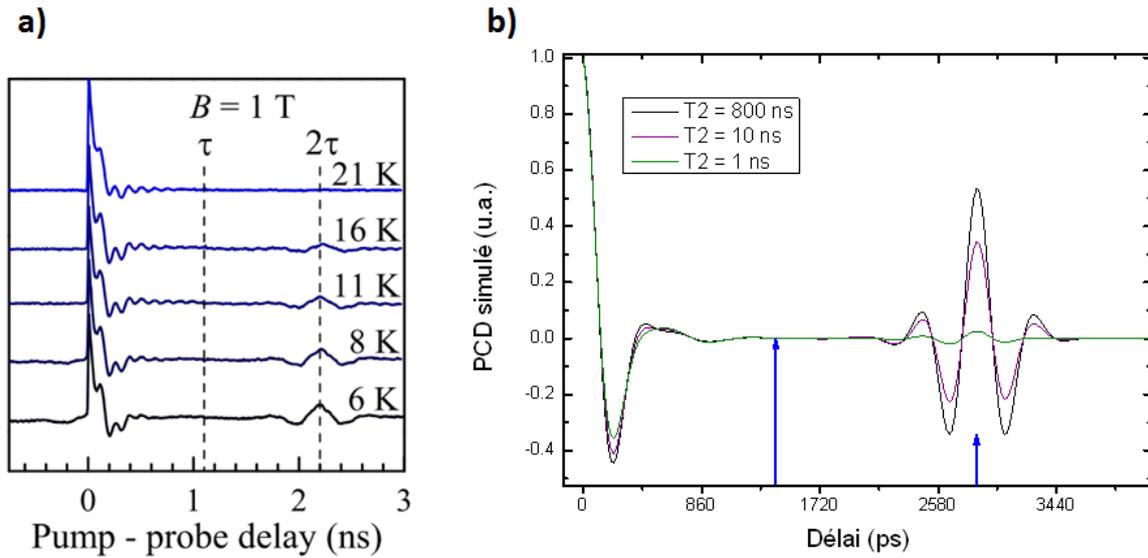


FIGURE 6.19 - a) Figure tirée de [129], illustrant l'apparition de l'écho à $t = 2\tau$, pour différentes températures. b) Évolution simulée du PCD pour différents temps de cohérence T_2 . Le système est excité par une impulsion π , puis l'arrivée d'une impulsion 2π à $t = \tau$ (1ère flèche bleue), provoque un écho de spin à $t = 2\tau$ (2ème flèche bleue). On remarque que l'arrivée de l'impulsion d'aire 2π à $t = \tau$ ne provoque pas d'évolution brusque du PCD car les populations des états de spin restent inchangées. Grâce à l'écho à $t = 2\tau$, cette technique permet d'observer l'évolution du T_2 même lorsque celui-ci prend des valeurs ≤ 1 ns.

qui présentent effectivement un écho de spins, et qui permettent donc d'étudier l'évolution du T_2^* quand celui-ci devient de l'ordre de la nanoseconde. L'équipe de M. Bayer a par la suite montré que, sur le même échantillon faiblement dispersé, une succession d'impulsions 2π de période $T_L/2 \ll T_2$, permettait un *découplage dynamique* du spin du trou et du bain nucléaire²⁵, et ainsi un dédoublement du T_2 [127].

Évolution de la phase du spin du trou

Une dernière subtilité du modèle présenté dans ce chapitre a récemment été mise en avant dans la référence [58]. Les auteurs étudient, grâce à une expérience pompe-sonde analogue à la nôtre, un ensemble de BQs dopées n . La faible inhomogénéité du facteur de Landé de l'électron résident (g_e) leur permet d'observer une évolution avec le champ de la phase, ainsi que de l'amplitude de la précession de son spin. Cette évolution est due à la précession, durant le temps radiatif, du spin de la composante non excitée de la fonction d'onde (ici l'électron) à une pulsation différente de celle de la composante excitée (le trou). Cette différence des pulsations induit que la résultante de spin après la recombinaison précesse avec une phase et une amplitude dépendant du champ.

25. En effet, les impulsions d'aire 2π sont équivalentes à des rotations du spin, qui peuvent renverser périodiquement la dynamique due au couplage au bain nucléaire, et ainsi annuler ses effets.

Dans le cas d'une précession relativement lente du spin photo-excité par rapport à celle du spin résident, sa dynamique peut être négligée. Et on obtient les équations suivantes régissant la phase Φ et l'amplitude A de la précession du spin résident :

$$\Phi = \frac{\pi}{2} - \arctan(\omega_r \tau_{rad})$$

$$A = \frac{\omega_r \tau_{rad}}{2\sqrt{1 + (\omega_r \tau_{rad})^2}}$$

où ω_r est la pulsation de Larmor du spin du porteur résident. La prise en compte de la précession du porteur photo-excité apporte une correction modeste à cette expression. Mis à part le signe opposé de notre signal, ce résultat reste valide dans le cas d'une BQ dopée p . Ainsi, en réduisant drastiquement la dispersion de g_h ($\frac{\Delta g_h}{g_h} \sim 1\%$) et en augmentant d'un ordre de grandeur le temps de relaxation T_{Δ}^e , on peut observer que l'amplitude et la phase de la précession du spin du trou suivent effectivement le modèle simplifié décrit dans [58].

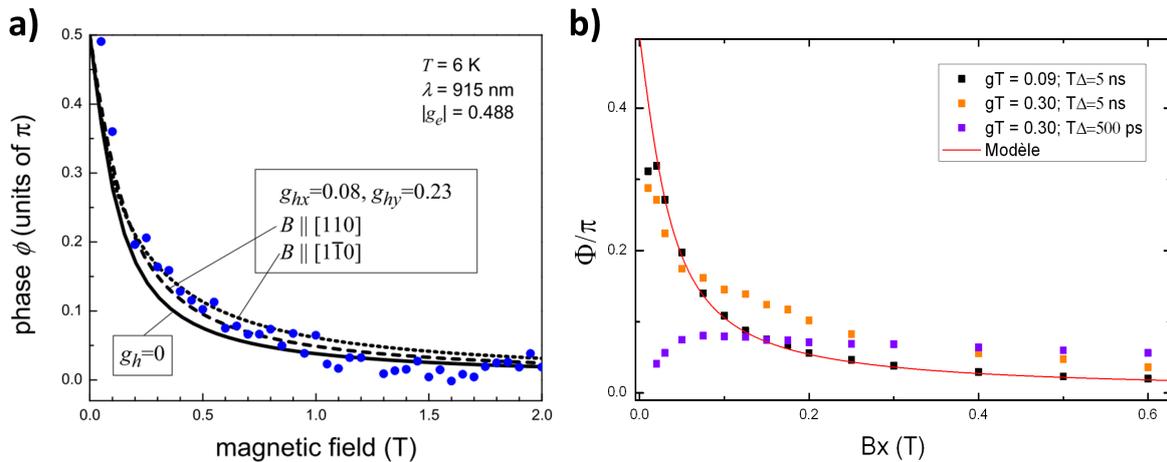


FIGURE 6.20 – a) Évolution de la phase de la précession du spin résident (ici un électron) avec le champ transverse appliqué (figure tirée de la référence [58]). b) Évolution simulée de la phase de la précession du spin du trou. On utilise $g_h = 0.41$ et $\frac{\Delta g_h}{g_h} \sim 1\%$. On utilise d'abord $g_T = 0.09$; $g_T = 0.30$ et $T_{\Delta}^e = 5ns$. Puis $g_T = 0.30$ et $T_{\Delta}^e = 500ps$. Le modèle représenté est celui décrit par l'équation (6.47).

Cependant, ce phénomène qui est bien inclus dans notre modèle, n'est pas observable avec notre échantillon, notamment pour trois raisons :

- la forte dispersion de g_h ($\frac{\Delta g_h}{g_h} \sim 30\%$), qui provoque un déphasage rapide, et qui empêche l'observation directe de la précession du spin du trou ;
- le facteur de Landé du trion $g_T = 0.30$ très proche de $g_h = 0.41$, ce qui diminue l'ampleur de l'effet (cf. figure 6.20), et le $\tau_{rad} = 700$ ps qui réduit la plage de champ sur lequel le déphasage est clairement visible ;

- enfin, le fait que le porteur excité soit un électron et non un trou amène une différence majeure sur le temps de déphasage du spin photo-excité lorsque $B \rightarrow 0$, qui devient alors $T_{\Delta}^e = 500\text{ps}$ (contre $T_{\Delta}^h = 10\text{ns}$). Ainsi, la relaxation du spin électronique pendant le temps radiatif, rentre en compétition avec sa précession, au point d'annuler la phase Φ dans le régime $B \rightarrow 0$ (cf. figure 6.20).

A cela, il faudrait ajouter la prise en compte du blocage de phase, qui a été omise dans la référence [58], mais qui ne doit pas influencer sur le signal observable, tant que $T_{2,h}^* < T_L$.

Annexe B : Évolution de la photoluminescence avec le champ transverse appliqué.

Nous souhaitons maintenant corroborer nos mesures pompe-sonde du *PCD*, avec des mesures de photoluminescence. La luminescence de l'échantillon, excitée par le faisceau pompe, est collectée en transmission, sur le trajet du faisceau sonde transmis. Elle est envoyée vers un spectromètre, constitué d'un double monochromateur *Acton* et d'une caméra CCD *Pylon*. Une mesure complémentaire ($D = 0,5$) est réalisé avec la photodiode à avalanche.

L'excitation résonante pose maintenant problème, car le laser va nécessairement²⁶ diffuser, et saturer la caméra. Nous avons donc utilisé une excitation de la couche de mouillage (à 872 nm), ou à l'énergie du *trion chaud* : $E_{X^+} + E_{1LO}$ (898 nm, où $E_{1LO} \approx 36$ meV correspond à l'énergie d'excitation d'un phonon optique dans le GaAs). Ces deux modes d'excitation permettent de garder un fort taux de polarisation de la luminescence²⁷. On peut maintenant utiliser le laser exciteur en mode pulsé, ou continu. On choisira d'utiliser une excitation pulsée, afin de s'approcher au maximum des conditions expérimentales de l'expérience pompe-sonde. Pour la même raison, on mesure la photoluminescence émise à 917 nm, dont on analyse le taux de polarisation circulaire : $TPC = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} = -2\langle S_e^z \rangle$. Le résultat de l'observation de $TPC = f(B_a^x)$ est présenté sur la figure 6.21.

On peut voir que la courbe $TPC = f(B_a^x)$ a une forme proche d'une Lorentzienne, de largeur à mi-hauteur 380 mT. Afin de comparer ce résultat à l'effet Hanle attendu sur cet échantillon, on va résoudre formellement la dynamique du spin électronique, soumise au Hamiltonien Zeeman, créé par un champ magnétique :

26. A moins d'avoir un montage particulier, permettant de rejeter le laser exciteur. Par exemple des montages à base de guides d'ondes ont été développés dans notre groupe [?, 96].

27. Dans le cas d'une excitation dans la couche de mouillage, le temps de vie du spin du trou est court (~ 1 ps) devant son temps de capture dans les BQ (~ 5 ps). Cependant la polarisation de la luminescence est assurée grâce à un temps de conservation du spin plus long pour l'électron. L'excitation à *1LO*, est souvent désignée comme "quasi-résonante", et permet d'atteindre des taux de polarisation valant 90% de ceux de l'excitation résonante [37, 7]

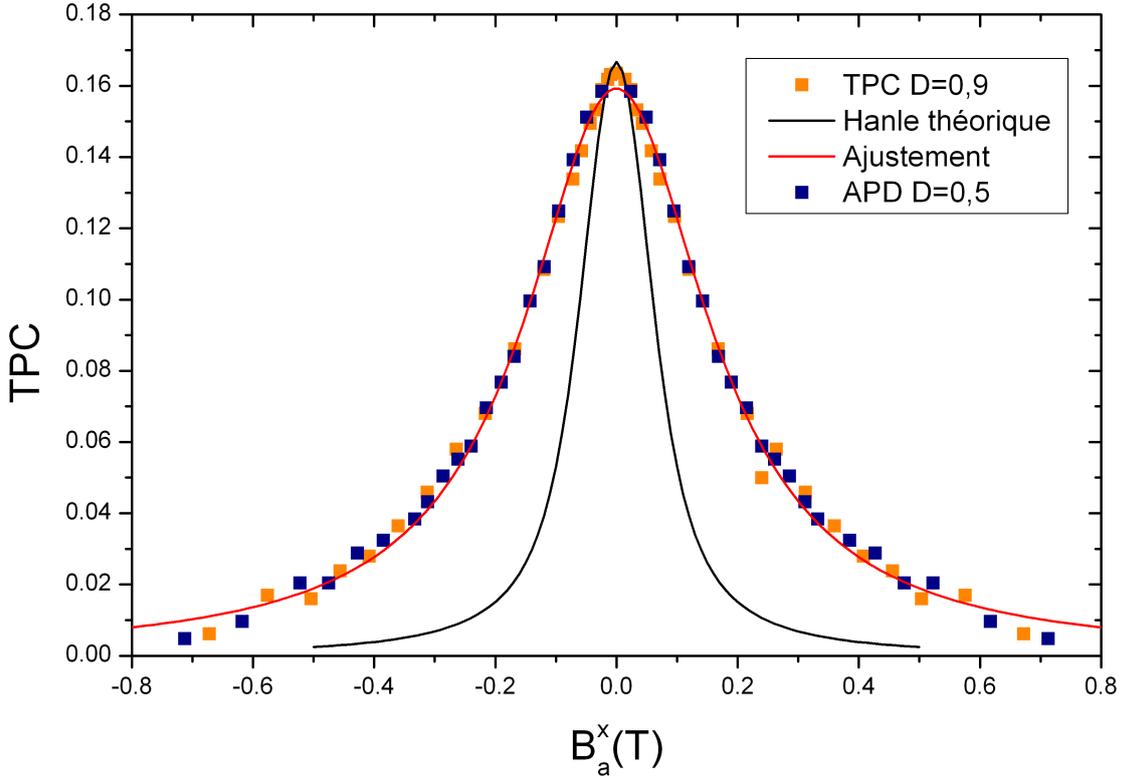


FIGURE 6.21 – *TPC de la photoluminescence de l'échantillon 74K31 pour une excitation modulée σ^+/σ^- , avec $D = 0,9$. Les signal pour $D = 0,5$ enregistré avec l'APD, est renormalisé (car proportionnel au TPC). On compare cette évolution à la courbe noire représentant l'effet Hanle théorique pour le trion X^+ en champ transverse (la dynamique du spin du trion est résolue exactement, en utilisant les paramètres et les fluctuations nucléaires $\Delta_n = 50 \text{ mT}$ quantifiés précédemment).*

$\vec{B} = (B_a^x + B_n^x)\vec{x} + B_n^y\vec{y} + B_n^z\vec{z}$. On intègre cette dynamique sur toutes les valeurs de B_n^j , avec une distribution de probabilité de B_n^j gaussienne, de largeur $\Delta_n = 50 \text{ mT}$ (conformément au modèle établi par Merkulov). On calcule ensuite le TPC théorique en calculant la polarisation moyenne du spin pendant son temps de vie. Le résultat est la courbe (quasi-lorentzienne) présentée en noir sur la figure 6.21, de largeur à mi-hauteur 139 mT . Il semble a priori que le TPC mesuré présente bien l'élargissement *anormal* observé par Krebs puis par Urbaszek ; et que cet élargissement soit associé à la PND créée par l'excitation asymétrique ($D = 0,9$), même pour une excitation non-résonante [68, 101].

Afin de vérifier ce résultat, on souhaite observer expérimentalement la polarisation circulaire en l'absence de PND ($D = 0,5$). On se sert maintenant d'un détecteur rapide, une photodiode à avalanche (APD) couplée à un monochromateur de focale ($f=0,5 \text{ m}$) plus faible. On démodule la tension de sortie à la fréquence de modulation de la polarisation pompe ($f_I = 100 \text{ kHz}$). La tension délivrée est proportionnelle à

$(I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-})$, et donc au TPC ²⁸. Le résultat est présenté renormalisé sur la figure 6.21, pour une excitation $D = 0,5$ de puissance d'excitation identique à celle utilisée pour exciter la photoluminescence.

Après sa renormalisation par $TPC(B_a^x = 0)$ ²⁹, on observe que le résultat est identique à celui obtenu pour $D = 0,9$, ce qui indique que la largeur importante du TPC n'est pas associée à un effet de PND. Les deux courbes sont cependant trois fois plus larges que la courbe Hanle prédite théoriquement pour la luminescence du trion X^+ (bien que les paramètres g_e , Δ_n et τ_{rad} ayant servi à la modélisation soit bien connus, grâce aux modélisations précédentes). Ces résultats pourraient être dus à l'observation involontaire d'excitons multi-chargés (X^{2+} , XX^+ , ...) par le laser non-résonant (et ce malgré sa faible puissance $\sim 50 \mu\text{W}$). Les résultats observés avec les deux techniques (avec différents D) sont malheureusement trop proche pour distinguer l'évolution des différentes composantes. L'excitation non-résonante excite toutes les BQ (quelque soit leur énergie) et les puissances utilisables (faibles étant donné la géométrie des dispositifs) ne permettent pas une orientation optique des BQ émettant à 917 nm aussi efficace qu'en pompe-sonde résonant.

28. En effet, $TPC = f(B_a^x) = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}}$. Or la l'intensité de la luminescence $I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}$ est constante dans la gamme de champs magnétiques appliqués, ce qui est vérifié grâce à la démodulation de la tension délivrée par l'APD à la fréquence d'un modulateur mécanique placé sur le chemin de la collection.

29. Les études précédentes ont montré que l'effet d'élargissement de la courbe Hanle, était indépendant de la polarisation initiale, à champ nul [101].

Bibliographie

- [1] Anatole Abragam. *The principles of nuclear magnetism*. Number 32. Oxford university press, 1961.
- [2] Y Acremann, Matthias Buess, CH Back, Martin Dumm, Günther Bayreuther, and D Pescia. Ultrafast generation of magnetic fields in a schottky diode. *Nature*, 414(6859) :51–54, 2001.
- [3] N Akopian, NH Lindner, E Poem, Y Berlatzky, J Avron, D Gershoni, BD Gerardot, and PM Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Physical review letters*, 96(13) :130501, 2006.
- [4] Christophe Arnold, Justin Demory, Vivien Loo, Aristide Lemaître, Isabelle Sagnes, Mikhaïl Glazov, Olivier Krebs, Paul Voisin, Pascale Senellart, and Loïc Lanco. Macroscopic rotation of photon polarization induced by a single spin. *Nature Communications*, 6 :6236, 2015.
- [5] Kenta Asakura, Yasuyoshi Mitsumori, Hideo Kosaka, Keiichi Edamatsu, Kouichi Akahane, Naokatsu Yamamoto, Masahide Sasaki, and Naoki Ohtani. Excitonic Rabi oscillations in self-assembled quantum dots in the presence of a local field effect. *Physical Review B*, 87(24) :241301, 2013.
- [6] E. Aubry, C. Testelin, F. Bernardot, M. Chamarro, and a. Lemaitre. Anisotropic spin splitting of the electron ground state in InAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 90(24) :242113, 2007.
- [7] Emilie Aubry. Phd. thesis. 2009.
- [8] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, a. Kuther, a. Gorbunov, a. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195315, May 2002.
- [9] M Bayer, O Stern, Pawel Hawrylak, S Fafard, and A Forchel. Hidden symmetries in the energy levels of excitonic artificial atoms. *Nature*, 405(6789) :923–926, 2000.
- [10] Thomas Belhadj, Claire Marie Simon, Thierry Amand, Pierre Renucci, Beatrice Chatel, Olivier Krebs, Aristide Lemaître, Paul Voisin, Xavier Marie, and Bernhard Urbaszek. Controlling the polarization eigenstate of a quantum dot exciton with light. *Physical Review Letters*, 103(8) :1–4, 2009.

- [11] Charles H Bennett and Gilles Brassard. Advances in cryptology : Proceedings of crypto84, august 1984. 1984.
- [12] J Berezovsky, M H Mikkelsen, N G Stoltz, L a Coldren, and D D Awschalom. Picosecond coherent optical manipulation of a single electron spin in a quantum dot. *Science (New York, N.Y.)*, 320(5874) :349–52, April 2008.
- [13] J Berezovsky, MH Mikkelsen, O Gywat, NG Stoltz, LA Coldren, and DD Awschalom. Nondestructive optical measurements of a single electron spin in a quantum dot. *Science*, 314(5807) :1916–1920, 2006.
- [14] F Bernardot, E Aubry, J Tribollet, C Testelin, M Chamarro, L Lombez, P-F Braun, X Marie, T Amand, and J-M Gerard. Linear and dynamical photoinduced dichroisms of in as/ ga as self-assembled quantum dots : Population relaxation and decoherence measurements. *Physical Review B*, 73(8) :085301, 2006.
- [15] Frederic Bernardot. Optique de polarisation et photonique. 2014.
- [16] G.L. Bir and G.E. Pikus. *Symmetry and Strain-induced Effects in Semiconductors*. Israel Program For Scientific Translations Catalog. Wiley/Halsted Press, 1974.
- [17] AS Bracker, EA Stinaff, D Gammon, ME Ware, JG Tischler, A Shabaev, Al L Efros, D Park, D Gershoni, VL Korenev, et al. Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots. *Physical review letters*, 94(4) :047402, 2005.
- [18] P-F Braun, X Marie, L Lombez, B Urbaszek, T Amand, P Renucci, VK Kalevich, KV Kavokin, O Krebs, P Voisin, et al. Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Physical review letters*, 94(11) :116601, 2005.
- [19] Joseph W Britton, Brian C Sawyer, Adam C Keith, C-C Joseph Wang, James K Freericks, Hermann Uys, Michael J Biercuk, and John J Bollinger. Engineered two-dimensional ising interactions in a trapped-ion quantum simulator with hundreds of spins. *Nature*, 484(7395) :489–492, 2012.
- [20] Adalberto Brunetti, Maria Vladimirova, Denis Scalbert, Hervé Folliot, and Alain Lecorre. Effect of holes on the dynamic polarization of nuclei in semiconductors. *Physical Review B*, 73(12) :121202, 2006.
- [21] Daniel Brunner, Brian D Gerardot, Paul a Dalgarno, Gunter Wüst, Khaled Karrai, Nick G Stoltz, Pierre M Petroff, and Richard J Warburton. A coherent single-hole spin in a semiconductor. *Science (New York, N.Y.)*, 325(5936) :70–72, July 2009.
- [22] E. Chekhovich, A. Krysa, M. Skolnick, and A. Tartakovskii. Light-polarization-independent nuclear spin alignment in a quantum dot. *Physical Review B*, 83(12) :1–6, March 2011.
- [23] E. a. Chekhovich, a. B. Krysa, M. Hopkinson, P. Senellart, a. Lemaitre, M. S. Skolnick, and a. I. Tartakovskii. *Nature Physics* 9.

- [24] EA Chekhovich, AB Krysa, MS Skolnick, and AI Tartakovskii. Direct measurement of the hole-nuclear spin interaction in single InP/GaInP quantum dots using photoluminescence spectroscopy. *Physical review letters*, 106(2) :027402, 2011.
- [25] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique*. 1986.
- [26] SA Crooker, J Brandt, C Sandfort, A Greilich, DR Yakovlev, D Reuter, AD Wieck, and M Bayer. Spin noise of electrons and holes in self-assembled quantum dots. *Physical review letters*, 104(3) :036601, 2010.
- [27] Ramin Dahbashi, Jens Hübner, Fabian Berski, Klaus Pierz, and Michael Oestreich. Optical Spin Noise of a Single Hole Spin Localized in an (InGa)As Quantum Dot. *Physical Review Letters*, (April) :1–5, 2014.
- [28] A. Boyer de la Giroday, A. J. Bennett, M. a. Pooley, R. M. Stevenson, N. Skold, R. B. Patel, I. Farrer, D. A. Ritchie, and a. J. Shields. All-electrical coherent control of the exciton states in a single quantum dot. pages 2–5, 2010.
- [29] RS Deacon, Y Kanai, S Takahashi, A Oiwa, K Yoshida, K Shibata, K Hirakawa, Y Tokura, and S Tarucha. Electrically tuned g tensor in an InAs self-assembled quantum dot. *Physical Review B*, 84(4) :041302, 2011.
- [30] David Deutsch. Quantum theory, the church-turing principle and the universal quantum computer. In *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, volume 400, pages 97–117. The Royal Society, 1985.
- [31] Matthew F Doty, Matthew Scheibner, Allan S Bracker, and Daniel Gammon. Optical spectroscopy of spins in coupled quantum dots. In *Single Semiconductor Quantum Dots*, pages 331–366. Springer, 2009.
- [32] X M Dou, B Q Sun, D S Jiang H Q Ni, and Z C Niu. Measurements of a fast nuclear spin dynamics in a single InAs quantum dot with positively charged exciton.
- [33] XM Dou, BQ Sun, DS Jiang, HQ Ni, and ZC Niu. Electron spin relaxation in a single InAs quantum dot measured by tunable nuclear spins. *Physical Review B*, 84(3) :033302, 2011.
- [34] MI Dyakonov and VI Perel. Theory of optical spin orientation of electrons and nuclei in semiconductors. In *Optical orientation*. 1984.
- [35] RI Dzhioev and VL Korenev. Stabilization of the electron-nuclear spin orientation in quantum dots by the nuclear quadrupole interaction. *Physical review letters*, 99(3) :037401, 2007.
- [36] B. Eble, P. Desfonds, F. Frasnay, F. Bernardot, C. Testelin, and M. Chamarro. Hole and trion spin dynamics in quantum dots under excitation by a train of circularly polarized pulses. *Physical Review B*, 81(4) :1–8, January 2010.

- [37] Benoit Eble. Interaction hyperfine dans les boites quantiques d' InAs/GaAs sous pompage optique. *Thèse de doctorat*, 2006.
- [38] Benoît Eble, Olivier Krebs, Aristide Lemaître, Katarzyna Kowalik, Arkadiusz Kudelski, Paul Voisin, Bernhard Urbaszek, Xavier Marie, and Thierry Amand. Dynamic nuclear polarization of a single charge-tunable InAs/GaAs quantum dot. (V) :3–6, 2005.
- [39] AI Ekimov and AA Onushchenko. Size quantization of the electron energy spectrum in a microscopic semiconductor crystal. *JETP lett*, 40(8) :1136–1139, 1984.
- [40] R. J. Epstein, D. T. Fuchs, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, and D. D. Awschalom. Hanle effect measurements of spin lifetimes in InAs self-assembled quantum dots. *Applied Physics Letters*, 78(6) :733–735, 2001.
- [41] P Fallahi, ST Yılmaz, and A Imamoglu. Measurement of a heavy-hole hyperfine interaction in ingaas quantum dots using resonance fluorescence. *Physical review letters*, 105(25) :257402, 2010.
- [42] I Favero, G Cassabois, R Ferreira, D Darson, C Voisin, J Tignon, C Delalande, G Bastard, Ph Roussignol, and JM Gérard. Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 68(23) :233301, 2003.
- [43] Richard P Feynman. Simulating physics with computers. *International journal of theoretical physics*, 21(6/7) :467–488, 1982.
- [44] Alberto Franceschetti, LW Wang, H Fu, and Alex Zunger. Short-range versus long-range electron-hole exchange interactions in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 58(20) :R13367, 1998.
- [45] F. Fras, B. Eble, P. Desfonds, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, A. Miard, and A. Lemaître. Hole-spin initialization and relaxation times in InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 84 :1–7, 2011.
- [46] F. Fras, B. Eble, P. Desfonds, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, A. Miard, and A. Lemaître. Two-phonon process and hyperfine interaction limiting slow hole-spin relaxation time in inas/gaas quantum dots. *Phys. Rev. B*, 86 :045306, Jul 2012.
- [47] Francois Fras. *Etude de la dynamique de spin du trou dans les boites quantiques d'InAs/GaAs : Pompage optique, Relaxation, Effets nucleaires*. PhD Thesis, 2011.
- [48] D Gammon, ES Snow, BV Shanabrook, DS Katzer, and D Park. Fine structure splitting in the optical spectra of single gaas quantum dots. *Physical review letters*, 76(16) :3005, 1996.
- [49] DZ Garbuzov, AI Ekimov, and VI Safarov. Measurement of the lifetime and of the spin-relaxation time of electrons in semiconductors by the optical-orientation method. *ZhETF Pisma Redaktsiiu*, 13 :36, 1971.

- [50] O Gazzano, S Michaelis de Vasconcellos, C Arnold, A Nowak, E Galopin, I Sagnes, L Lanco, A Lemaître, and P Senellart. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. *Nature communications*, 4 :1425, 2013.
- [51] L Goldstein, F Glas, JY Marzin, MN Charasse, and G Le Roux. Growth by molecular beam epitaxy and characterization of inas/gaas strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters*, 47(10) :1099–1101, 1985.
- [52] A. Greilich, R. Oulton, E. Zhukov, I. Yugova, D. Yakovlev, M. Bayer, A. Shabaev, Al. Efros, I. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck. Optical Control of Spin Coherence in Singly Charged (In,Ga)As/GaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 96(22) :7–10, June 2006.
- [53] A Greilich, DR Yakovlev, A Shabaev, Al L Efros, IA Yugova, R Oulton, V Stavarache, D Reuter, A Wieck, and M Bayer. Mode locking of electron spin coherences in singly charged quantum dots. *Science*, 313(5785) :341–345, 2006.
- [54] S. V. Gupalov, E. L. Ivchenko, and a. V. Kavokin. Fine structure of localized exciton levels in quantum wells. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 86(2) :388–394, February 1998.
- [55] Johannes Hackmann, Frithjof B Anders, Philipp Glasenapp, Alex Greilich, and Manfred Bayer. Influence of the nuclear electric quadrupolar interaction on the coherence time of hole-and electron-spins confined in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 2015.
- [56] Jack Hansom, Carsten HH Schulte, Claire Le Gall, Clemens Matthiesen, Edmund Clarke, Maxime Hugues, Jacob M Taylor, and Mete Atatüre. Environment-assisted quantum control of a solid-state spin via coherent dark states. *Nature Physics*, 2014.
- [57] D. Heiss, S. Schaeck, H. Huebl, M. Bichler, G. Abstreiter, J. J. Finley, D. V. Bulaev, and Daniel Loss. Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 76 :1–4, 2007.
- [58] A. B. Henriques, R. C. Cordeiro, P. M. Koenraad, F. W. M. Otten, and M. Bayer. Model for the light-induced magnetization in singly charged quantum dots. *Physical Review B*, 91(8) :081303, February 2015.
- [59] Sylvain Hermelin, Shintaro Takada, Michihisa Yamamoto, Seigo Tarucha, Andreas D Wieck, Laurent Saminadayar, Christopher Bäuerle, and Tristan Meunier. Electrons surfing on a sound wave as a platform for quantum optics with flying electrons. *Nature*, 477(7365) :435–438, 2011.
- [60] J. Houel, a. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, B. Gerardot, P. Dalgarno, a. Badolato, P. Petroff, a. Ludwig, D. Reuter, a. Wieck, and R. Warburton. Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby InGaAs Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 108(10) :107401, March 2012.

- [61] A Imamog, David D Awschalom, Guido Burkard, David P DiVincenzo, Daniel Loss, M Sherwin, A Small, et al. Quantum information processing using quantum dot spins and cavity qed. *Physical Review Letters*, 83(20) :4204, 1999.
- [62] EO Kane. The k p method. *Semiconductors and Semimetals*, 1 :75–100, 1966.
- [63] N Kirstaedter, Nikolay N Ledentsov, Marius Grundmann, Dieter Bimberg, VM Ustinov, SS Ruvimov, MV Maximov, Ps S Kop'ev, Zh I Alferov, Ulrike Richter, et al. Low threshold, large to injection laser emission from (inga) as quantum dots. *Electronics Letters*, 30(17) :1416–1417, 1994.
- [64] Charles Kittel. Introduction to solid state physics. 1953.
- [65] K. Kowalik, O. Krebs, a. Lemaître, J. Gaj, and P. Voisin. Optical alignment and polarization conversion of the neutral-exciton spin in individual InAs GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 77(16) :161305, April 2008.
- [66] K. Kowalik, O. Krebs, a. Lemàtre, B. Eble, a. Kudelski, P. Voisin, S. Seidl, and J. a. Gaj. Monitoring electrically driven cancellation of exciton fine structure in a semiconductor quantum dot by optical orientation. *Applied Physics Letters*, 91(18) :89–92, 2007.
- [67] G. G. Kozlov. 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(4) :803–815, October 2007.
- [68] O Krebs, P Maletinsky, T Amand, B Urbaszek, A Lemaitre, P Voisin, X Marie, and A Imamoglu. Anomalous Hanle Effect in Quantum Dots : Evidence for Strong Dynamical Nuclear Polarization in Transverse Magnetic Field. *Physical Review Letters*, pages 1–5, 2010.
- [69] Olivier Krebs, Benoît Eble, Aristide Lemaître, Paul Voisin, Bernhard Urbaszek, Thierry Amand, and Xavier Marie. Hyperfine interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots : dynamical nuclear polarization versus spin relaxation. *Comptes Rendus Physique*, 9(8) :874–884, 2008.
- [70] D. N. Krizhanovskii, a. Ebbens, a. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson. Individual neutral and charged $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 72(16) :8–11, 2005.
- [71] Miro Kroutvar, Yann Ducommun, Dominik Heiss, Max Bichler, Dieter Schuh, Gerhard Abstreiter, and Jonathan J Finley. Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. *Nature*, 432(7013) :81–84, 2004.
- [72] H Kurtze, J Seebeck, P Gartner, DR Yakovlev, D Reuter, AD Wieck, M Bayer, and F Jahnke. Carrier relaxation dynamics in self-assembled semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 80(23) :235319, 2009.
- [73] C W Lai, P Maletinsky, a Badolato, and a Imamoglu. Knight-field-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots. *Physical review letters*, 96(16) :167403, 2006.

- [74] S. Laurent, M. Senes, O. Krebs, V. Kalevich, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin. Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled InAs GaAs quantum dots under nonresonant optical excitation. *Physical Review B*, 73(23) :235302, June 2006.
- [75] Sabine Laurent. *Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2004.
- [76] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, and H. Mariette. Valence-band mixing in neutral, charged, and mn-doped self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, 76 :045331, Jul 2007.
- [77] Y. Q. Li, D. W. Steuerman, J. Berezovsky, D. S. Seferos, G. C. Bazan, and D. D. Awschalom. Cavity enhanced faraday rotation of semiconductor quantum dots. *Applied Physics Letters*, 88(19), 2006.
- [78] Yan Li, N. Sinitsyn, D. L. Smith, D. Reuter, A. D. Wieck, D. R. Yakovlev, M. Bayer, and S. A. Crooker. Intrinsic spin fluctuations reveal the dynamical response function of holes coupled to nuclear spin baths in (in,ga)as quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :186603, May 2012.
- [79] SW Lin, C Balocco, M Missous, AR Peaker, and AM Song. Coexistence of deep levels with optically active inas quantum dots. *Physical Review B*, 72(16) :165302, 2005.
- [80] Peter Lodahl, Sahand Mahmoodian, and Søren Stobbe. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures. *Reviews of Modern Physics*, 87(2) :347, 2015.
- [81] L. Lombez, P. F. Braun, X. Marie, P. Renucci, B. Urbaszek, T. Amand, O. Krebs, and P. Voisin. Electron spin quantum beats in positively charged quantum dots : nuclear field effects. 2007.
- [82] Daniel Loss and David P DiVincenzo. Quantum computation with quantum dots. *Physical Review A*, 57(1) :120, 1998.
- [83] J. Lu, M. J. R. Hoch, P. L. Kuhns, W. G. Moulton, Z. Gan, and A. P. Reyes. Nuclear spin-lattice relaxation in n-type insulating and metallic GaAs single crystals. *Phys. Rev. B*, 74 :125208, Sep 2006.
- [84] J. M. Luttinger. Quantum theory of cyclotron resonance in semiconductors : General theory. 1956.
- [85] Pawel Machnikowski and Tilmann Kuhn. Theory of the time-resolved Kerr rotation in ensembles of trapped holes in semiconductor nanostructures. *Physical Review B*, 81(11) :1–13, March 2010.
- [86] MN Makhonin, EA Chekhovich, P Senellart, A Lemaître, MS Skolnick, and AI Tartakovskii. Optically tunable nuclear magnetic resonance in a single quantum dot. *Physical Review B*, 82(16) :161309, 2010.

- [87] P Maletinsky, A Badolato, and A Imamoglu. Dynamics of quantum dot nuclear spin polarization controlled by a single electron. *Physical review letters*, 99(5) :056804, 2007.
- [88] P. Maletinsky, M. Kroner, and A. Imamoglu. Breakdown of the nuclear-spin-temperature approach in quantum-dot demagnetization experiments. *Nature Physics*, 5(6) :407–411, May 2009.
- [89] Patrick Maletinsky. Polarization and Manipulation of a Mesoscopic Nuclear Spin Ensemble Using a Single Confined Electron Spin. 2008.
- [90] J-Y Marzin and G Bastard. Calculation of the energy levels in InAs quantum dots. *Solid state communications*, 92(5) :437–442, 1994.
- [91] G Medeiros-Ribeiro, D Leonard, and PM Petroff. Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots. *Applied physics letters*, 66(14) :1767–1769, 1995.
- [92] I. A. Merkulov. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 65(20) :205309, April 2002.
- [93] Xavier Michalet, Fabien F Pinaud, Laurent A Bentolila, James M Tsay, SJJL Doose, Jack J Li, Gobalakrishnan Sundaresan, Anna M Wu, Sanjiv S Gambhir, and Shimon Weiss. Quantum dots for live cells, in vivo imaging, and diagnostics. *science*, 307(5709) :538–544, 2005.
- [94] P Michler, A Imamoglu, MD Mason, PJ Carson, GF Strouse, and SK Buratto. Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. *Nature*, 406(6799) :968–970, 2000.
- [95] Yasuyoshi Mitsumori, Yuki Miyahara, Kentaro Uedaira, Hideo Kosaka, Satoshi Shimomura, Satoshi Hiyamizu, and Keiichi Edamatsu. Micro Pump Probe Spectroscopy of an Exciton in a Single Semiconductor Quantum Dot Using a Heterodyne Technique. *Japanese Journal of Applied Physics*, 50(9) :095004, September 2011.
- [96] Leonard Monniello. *Excitation résonante de boîtes quantiques pour la génération d'états non-classiques de la lumière*. PhD thesis, Paris 6, 2015.
- [97] Michele Montinaro, Gunter Wust, Mathieu Munsch, Yannik Fontana, Eleonora Russo-Averchi, Martin Heiss, Anna Fontcuberta i Morral, Richard J Warburton, and Martino Poggio. Quantum dot opto-mechanics in a fully self-assembled nanowire. *Nano letters*, 14(8) :4454–4460, 2014.
- [98] A Nakamura, D Paget, C Hermann, C Weisbuch, G Lampel, and BC Cavenett. Optical detection of electron spin resonance in CdTe. *Solid State Communications*, 30(7) :411–414, 1979.
- [99] Hai Son Nguyen. Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semiconductrices. *Thèse de doctorat*, 2012.

- [100] Hai Son Nguyen, Gregory Sallen, Marco Abbarchi, Robson Ferreira, Christophe Voisin, Philippe Roussignol, Guillaume Cassabois, and Carole Diederichs. Photon neutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 87(11) :1–15, 2013.
- [101] J Nilsson, L Bouet, A J Bennett, T Amand, R M Stevenson, D A Ritchie, S Kunz, X Marie, A J Shields, and B Urbaszek. Voltage control of electron-nuclear spin correlation time in a single quantum dot. *Physical Review B*, pages 1–6, 2013.
- [102] R Oulton, JJ Finley, AI Tartakovskii, DJ Mowbray, MS Skolnick, M Hopkinson, A Vasanelli, R Ferreira, and G Bastard. Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled stranski-krastanow quantum dots. *Physical Review B*, 68(23) :235301, 2003.
- [103] Daniel Paget, Thierry Amand, and J-P Korb. Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semiconductors. *Physical Review B*, 77(24) :245201, 2008.
- [104] Hanhee Paik, DI Schuster, Lev S Bishop, G Kirchmair, G Catelani, AP Sears, BR Johnson, MJ Reagor, L Frunzio, LI Glazman, et al. Observation of high coherence in Josephson junction qubits measured in a three-dimensional circuit QED architecture. *Physical Review Letters*, 107(24) :240501, 2011.
- [105] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, and J. M. Gérard. Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 86(8) :1634–1637, 2001.
- [106] M Paillard, X Marie, P Renucci, T Amand, A Jbeli, and JM Gérard. Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 86(8) :1634, 2001.
- [107] David Press, Kristiaan De Greve, Peter L. McMahon, Thaddeus D. Ladd, Benedikt Friess, Christian Schneider, Martin Kamp, Sven Höfling, Alfred Forchel, and Yoshihisa Yamamoto. Ultrafast optical spin echo in a single quantum dot. *Nature Photonics*, 4(6) :367–370, 2010.
- [108] Craig Pryor and Michael Flatté. Landé g Factors and Orbital Momentum Quenching in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 96(2) :1–4, January 2006.
- [109] II Ryzhov, SV Poltavtsev, KV Kavokin, MM Glazov, GG Kozlov, Maria Vladimirova, Denis Scalbert, Steeve Cronenberger, AV Kavokin, Aristide Lemaitre, et al. Measurements of nuclear spin dynamics by spin-noise spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 106(24) :242405, 2015.
- [110] G. Salis and M. Moser. Faraday-rotation spectrum of electron spins in microcavity-embedded GaAs quantum wells. *Physical Review B*, 72(11) :115325, September 2005.
- [111] G Sallen, S Kunz, T Amand, L Bouet, T Kuroda, T Mano, D Paget, O Krebs, X Marie, K Sakoda, and B Urbaszek. Nuclear magnetization in gallium arsenide

- quantum dots at zero magnetic field. *Nature communications*, 5 :3268, January 2014.
- [112] R Seguin, A Schliwa, S Rodt, K Pötschke, UW Pohl, and D Bimberg. Size-dependent fine-structure splitting in self-organized inas/gaas quantum dots. *Physical review letters*, 95(25) :257402, 2005.
- [113] M Sénès, B Urbaszek, X Marie, T Amand, J Tribollet, Frédéric Bernardot, Christophe Testelin, Maria Chamarro, and J-M Gérard. Exciton spin manipulation in in as/ ga as quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects. *Physical Review B*, 71(11) :115334, 2005.
- [114] Peter W Shor. Algorithms for quantum computation : Discrete logarithms and factoring. In *Foundations of Computer Science, 1994 Proceedings*, pages 124–134. IEEE, 1994.
- [115] TH Stievater, Xiaoqin Li, D Gammon Steel, D Gammon, DS Katzer, D Park, C Piermarocchi, and LJ Sham. Rabi oscillations of excitons in single quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(13) :133603, 2001.
- [116] S. Stobbe, T. W. Schlereth, S. Höfling, a. Forchel, J. M. Hvam, and P. Lodahl. Large quantum dots with small oscillator strength. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 82(23) :1–4, 2010.
- [117] IN Stranski and L Krastanov. Sitzungbericht der akademie der wissn-schaften wien. *Math.-Naturwiss. Klasse Iib*, 146(797) :31, 1937.
- [118] a. I Tartakovskii, J. Cahill, M. N Makhonin, D. M Whittaker, J-P. R Wells, A. M Fox, D. J Mowbray, M. S Skolnick, K. M Groom, M. J Steer, and M. Hopkinson. Dynamics of Coherent and Incoherent Spin Polarizations in Ensembles of Quantum Dots. *Physical review letters*, 93(5) :057401, July 2004.
- [119] A. I. Tartakovskii, T. Wright, a. Russell, V. I. Fal’Ko, a. B. Van’Kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, a. Tahraoui, H. Y. Liu, and M. Hopkinson. Nuclear spin switch in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 98(2) :1–4, 2007.
- [120] C. Testelin, F. Bernardot, B. Eble, and M. Chamarro. Hole spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots. *Physical Review B*, 79(19) :195440, May 2009.
- [121] Y Toda, T Sugimoto, M Nishioka, and Y Arakawa. Near-field coherent excitation spectroscopy of ingaas/gaas self-assembled quantum dots. *Applied Physics Letters*, 76(26) :3887–3889, 2000.
- [122] Catherine Tonin. Manipulation cohérente de l’émission résonnante d’une boîte quantique unique. *Thèse de doctorat*, 2012.
- [123] Catherine Tonin, Richard Hostein, Valia Voliotis, Roger Grousson, Aristide Lemaitre, and Anthony Martinez. Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 85(15) :155303, April 2012.

- [124] R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. Plumhof, J. van den Brink, a. Rastelli, and O. Schmidt. Universal Recovery of the Energy-Level Degeneracy of Bright Excitons in InGaAs Quantum Dots without a Structure Symmetry. *Physical Review Letters*, 109(14) :1–5, October 2012.
- [125] Bernhard Urbaszek, Xavier Marie, Thierry Amand, Olivier Krebs, Paul Voisin, Patrick Maletinsky, Alexander Högele, and Atac Imamoglu. Nuclear spin physics in quantum dots : An optical investigation. *Reviews of Modern Physics*, 85(1) :79–133, January 2013.
- [126] A. Vagov, V. Axt, T. Kuhn, W. Langbein, P. Borri, and U. Woggon. Nonmonotonous temperature dependence of the initial decoherence in quantum dots. *Physical Review B*, 70(20) :201305, November 2004.
- [127] S Varwig, E Evers, and a. Greilich. All-optical implementation of the CPMG-protocol for dynamic decoupling of hole spins in (In, Ga) As quantum dots. *Physical Review B*, 121306 :4, 2014.
- [128] S Varwig, E Evers, A Greilich, DR Yakovlev, D Reuter, AD Wieck, and M Bayer. All-optical implementation of a dynamic decoupling protocol for hole spins in (in, ga) as quantum dots. *Physical Review B*, 90(12) :121306, 2014.
- [129] S Varwig, A. René, A Greilich, D R Yakovlev, D Reuter, A D Wieck, and M Bayer. Temperature dependence of hole spin coherence in (In,Ga)As quantum dots measured by mode-locking and echo techniques. *Physical Review B*, 1 :5, January 2013.
- [130] S. Varwig, a. Schwan, D. Barmscheid, C. Müller, a. Greilich, I. Yugova, D. Yakovlev, D. Reuter, a. Wieck, and M. Bayer. Hole spin precession in a (In,Ga)As quantum dot ensemble : From resonant spin amplification to spin mode locking. *Physical Review B*, 86(7) :075321, August 2012.
- [131] A Vasanelli, R Ferreira, and G Bastard. Continuous absorption background and decoherence in quantum dots. *Physical review letters*, 89(21) :216804, 2002.
- [132] I. a. Yugova, M. M. Glazov, D. R. Yakovlev, a. a. Sokolova, and M. Bayer. Coherent spin dynamics of electrons and holes in semiconductor quantum wells and quantum dots under periodical optical excitation : Resonant spin amplification versus spin mode locking. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 85 :1–16, 2012.
- [133] Eugenio Zallo, Paola Atkinson, Armando Rastelli, and Oliver G Schmidt. Controlling the formation of quantum dot pairs using nanohole templates. *Journal of Crystal Growth*, 338(1) :232–238, 2012.
- [134] A Zrenner, LV Butov, M Hagn, G Abstreiter, G Böhm, and G Weimann. Quantum dots formed by interface fluctuations in alas/gaas coupled quantum well structures. *Physical review letters*, 72(21) :3382, 1994.