

Contrôle optique des spins électroniques et nucléaires dans un nano-objet unique: vers le développement de nano-mémoires et d'applications en imagerie

Mael Vidal

► To cite this version:

Mael Vidal. Contrôle optique des spins électroniques et nucléaires dans un nano-objet unique : vers le développement de nano-mémoires et d'applications en imagerie. Physique [physics]. INSA de Toulouse, 2016. Français. NNT : 2016ISAT0003 . tel-01511091

HAL Id: tel-01511091 https://theses.hal.science/tel-01511091

Submitted on 20 Apr 2017

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.





En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par INSA Toulouse **Discipline ou spécialité :** Physique de la matière

Présentée et soutenue par *Maël VIDAL* **Le** 20 septembre 2016 à Toulouse

Titre : Contrôle optique des spins électroniques et nucléaires dans un nano-objet unique: vers le développement de nano-mémoires et d'applications en imagerie

JURY

L. BESOMBES
O. KREBS
B. EBLE
C. FONTAINE
D. PAGET
T. AMAND
B. URBASZEK

Directeur de Recherche au CNRS, Institut Néel Directeur de Recherche au CNRS, C2N Maître de Conférences, INSP Directeur de Recherche au CNRS, LAAS Directeur de Recherche au CNRS, LPMC Directeur de Recherche au CNRS, LPCNO Directeur de Recherche au CNRS, LPCNO

Ecole doctorale : Science de la Matière Unité de recherche : Laboratoire de Physique et Chimie des Nano-Objets, UMR 5215 INSA-CNRS-UPS Directeur(s) de Thèse : T. AMAND, B. URBASZEK

THESE

Présentée à

L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

En vue de l'obtention du DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE

Spécialité : Physique de la matière

par :

Maël VIDAL

Contrôle optique des spins électroniques et nucléaires dans un nano-objet unique: vers le développement de nano-mémoires et d'applications en imagerie

Soutenue le 20 septembre 2016, à Toulouse

Devant la commision d'examen :

Rapporteur	L. BESOMBES	Directeur de Recherche au CNRS, Institut Néel
Rapporteur	O. KREBS	Directeur de Recherche au CNRS, C2N
Examinateur	B. EBLE	Maître de Conférences, INSP
Examinateur	C. FONTAINE	Directeur de Recherche au CNRS, LAAS
Examinateur	D. PAGET	Directeur de Recherche au CNRS, LPMC
Directeur de Thèse	T. AMAND	Directeur de Recherche au CNRS, LPCNO
Directeur de Thèse	B. URBASZEK	Directeur de Recherche au CNRS, LPCNO

Cette thèse à été préparée au sein du Laboratoire de Physique et Chimie des Nano-Objets, UMR 5215 INSA-CNRS-UPS Le confinement tridimensionnel des porteurs dans les boîtes quantiques leur confère une structure électronique comparable à celle d'un atome. Il exalte de plus les interactions coulombiennes entre les charges qui l'occupent ainsi que les effets nucléaires, rendant ces objets particulièrement adaptés à l'étude des excitons et de leurs complexes chargés, tout particulièrement du point de vue de leur structure fine, de leurs propriétés magnéto-optiques et nucléaires. Ce travail porte sur des boîtes quantiques non-contraintes et sans couche de mouillage de GaAs/AlGaAs de symétrie trigonale (C_{3v}). Ces boîtes sont produites à l'Institut National des Sciences des Matériaux de Tsukuba (Japon), par une technique d'épitaxie par jet moléculaire modifiée où la croissance des boîtes quantiques sont insérées dans une structure p-i-n afin de pouvoir contrôler leur état de charge en appliquant une tension perpendiculaire au plan des boîtes. Nous avons mis en évidence la modification profonde induite par l'orientation cristalline [111] choisie ici, au lieu de l'orientation habituelle selon [001], conférant un caractère tensoriel à l'interaction des trous lourds avec un champ magnétique externe ou à l'interaction hyperfine avec les spins nucléaires.

Le premier chapitre comporte une présentation des concepts utilisés dans ce manuscrit et résume les études précédentes menées sur ces échantillons.

Le deuxième chapitre se consacre au dispositif expérimental de magnéto-spectroscopie sur boîte unique, en particulier l'alignement et la calibration de la tête du microscope confocal employé ainsi qu'à la description des échantillons utilisés.

Le troisième chapitre retrace nos avancées dans la séparation des différents états de charge dans les boîtes en fonction de la largeur de la barrière tunnel les séparant de la région dopée n et de l'énergie d'émission des boîtes. La structure fine des différents complexes excitoniques chargés associés à un état de charge donné en l'absence de champ magnétique y est aussi décrite. La luminescence d'états à plus haute énergie est aussi étudiée ouvrant la voie à des méthodes d'orientation optique du spin sous excitation quasi-résonante.

Le quatrième chapitre est consacré à la magnéto-spectroscopie de boîte unique, technique permettant l'identification des différents complexes excitoniques en tirant partie des règles de sélection optique spécifiques pour les boîtes de symétrie C_{3v} , où les états de trous lourds se couplent en champ magnétique longitudinal. La modélisation de ces complexes a été développée en collaboration avec l'Institut Ioffe de St Petersburg (Russie). Nous avons pu mesurer les coefficients du tenseur gyromagnétique des trous lourds sur leur état fondamental (état orbital de type *s*). En outre en comparant les signatures en magnéto-photoluminescence des trions chauds X^{-*} et la réponse optique à l'excitation des transitions (trous *s* vers l'électron

p), nous avons pu déduire les contributions orbitalaires et de spin du facteur gyromagnétique des électrons de conduction sur l'état excité (état orbital de type p).

Le dernier chapitre est consacré aux effets hyperfins entre les trous et les noyaux des atomes de la boîte. Nous avons pu déduire de nos mesures, sous champ magnétique longitudinal, les constantes hyperfines spécifiques du trou en interaction avec le champ nucléaire effectif résultant de la polarisation dynamique des noyaux.

The carrier confinement in all three spatial dimensions in quantum dots leads to an electronic structure with discrete energy levels similar to individual atoms. The Coulomb interaction between charge carriers and the hyperfine interaction between electron and nuclear spins are enhanced by the confinement.

Quantum dots are model systems for studying neutral and charged excitons, in particular their fine structure, magneto optical properties and interaction with nuclear spins. In this thesis we investigate strain free GaAs/AlGaAs quantum dots with C_{3v} symmetry grown without a wetting layer along the [111] direction. Compared to standard quantum dots grown along the (001) axis, the C_{3v} symmetry of (111) dots drastically impacts the interaction with external magnetic fields and also internal fields created by the hyperfine interaction: the interaction is now characterized by a Landé g-tensor. These dots are grown in the National Institute for Material Science in Japan, by a modified molecular beam epitaxy method called droplet epitaxy which uses a metallic droplet of Ga to initiate the growth on a GaAs (111)A substrate. The quantum dots are embedded in a p-i-n structure to control the charge state of the dots by applying a bias between a doped region and the top contact.

Concerning the thesis outline, the first chapter presents theoretical concepts used in this manuscript and previous results on this sample.

The second chapter presents the experimental setup for magneto-spectroscopy on single quantum dots, focusing on the alignment and calibration of the confocal microscope head. The third chapter presents the improvement of the charge separation of electronic complexes as a function of (i) tunnel barrier width between dots and the n-doped region, and (ii) the emission energy of the dot. The fine structure of different charge complexes linked to their electronic structure state is also described in the absence of external magnetic fields. Results on photoluminescence of complexes at higher energy than the ground states open a promising way to achieve efficient quasi-resonant excitation.

The fourth chapter presents magneto-spectroscopy on single quantum dots, allowing clear identification of the charge states by analyzing the particular selection rules for dots with C_{3v} symmetry for which the heavy hole states are coupled by the longitudinal magnetic field. Modeling of certain transitions is done in collaboration with Ioffe Institute in St. Petersburg, Russia. The gyromagnetic tensor of the valence heavy hole was measured for the s-state. In addition, using the magneto-photoluminesence of the hot trion X^{-*} and the photoluminescence resulting from the excitation of the s-hole to p-electron transition, we measured the spin and orbital gyromagnetic value of electron spin in a *p* state.

The last chapter reports on the hyperfine interaction in longitudinal magnetic fields between a hole spin and the nuclear spins of the atoms forming the dot. The hole hyperfine interaction constant for (111) grown dots is measured and analyzed.

Remerciements

Ce travail de trois ans est le fruit d'un travail de collaboration avec les laboratoires partenaires de ce projet et au sein de l'équipe Opto-électronique quantique du LPCNO.

Je tiens donc à remercier tout particulièrement l'équipe de Takaaki MANO au NIMS (Tsukuba, Japon) qui a produit les échantillons étudiés pendant ces trois ans. Sans leurs échantillons de grande qualité et leur réactivité dans la production de nouveaux échantillons, aucune étude poussée n'aurait pu être menée.

Ensuite, Mikhail V. DURNEV et Mikhail M. GLAZOV et Eugeneous L. IVECHENKO du Ioffe Institute (St Petersburg, Russie) pour leur aide précieuse dans l'analyse des résultats en particulier pour nous avoir aiguillés pour l'identification des complexes. Je n'oublierai pas nos discussions intéressantes à chacune de vos visites. Bonne continuation à guider les expérimentateurs.

Je tiens également à remercier l'équipe Opto-électronique quantique du LPCNO qui m'a accueilli pour mon stage de fin d'étude puis ma thèse. L'ambiance de travail pendant ces trois années et demie a contribué à la réussite de ce projet et au souvenir que j'en garderai.

Tout d'abord, Bernhard URBASZEK et Thierry AMAND qui furent mes co-directeurs de thèse pendant ces trois années.

Merci Bernhard pour m'avoir accueilli dans cette équipe et présenté les spécificités des boîtes quantiques et du dispositif expérimental. Ton aide et tes idées pour présenter les résultats resteront précieuses pour la suite.

Merci Thierry pour tout ce temps accordé pour la discussion des résultats expérimentaux, de leur analyse mais aussi des idées d'expériences complémentaires. Sans compter, toutes les discussions sans rapport avec la physique.

Ainsi qu'à Pierre RENUCCI de m'avoir fait découvrir cette équipe lors de mon stage de fin d'étude et tout le temps passé à m'expliciter le fonctionnement d'une spin-LED. Merci à Philippe BARATE et Tiantian ZHANG de m'avoir formé sur les alignements optiques, cela m'a grandement aidé par la suite. Merci à Louis BOUET à qui ce travail doit beaucoup et pour les moments partagés dans la salle d'expérimentation.

Merci aussi à tous les membres de l'équipe, responsables de la bonne humeur : Ian AUPIAIS, Sawsen AZAIZA, Andrea BALOCCHI pour ses idées et l'alignement du laser, Fabian CADIZ, Hélène CARRERE, Maxime GAY, Delphine LAGARDE pour son aide, Marco MANCA qui va poursuivre ce travail, Xavier MARIE, Simone MAZZUCATO, Raphaël PICARD, Cédric ROBERT, Gang WANG, Pengyu ZHOU.

Et tous ceux qui ont aussi participé à ce travail : Nuno, Dias MARIN, Cathy CROUZET, Francis CHOUZENOUX, Sébastien PINAUD pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée.

Merci également à Yves DELORME, Pier-Francesco FAZINNI, Gaëlle MURAILLE, Julien SCHAUBER, Lauryanne TEULON pour leurs conseils pour les heures d'enseignement.

Je tiens aussi à remercier particulièrement Lucien BESOMBES et Olivier KREBS d'avoir accepté la charge de rapporteur ainsi que Benoit EBLE, Chantal FONTAINE et Daniel PAGET d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Sans oublier mes parents et ma sœur pour toute leur aide et support pendant ces trois ans en particulier pendant la période de rédaction.

Glossaire

$\uparrow(\downarrow)$	Etats de spin d'un électron de conduction $\left \frac{1}{2}\right\rangle \left(\left -\frac{1}{2}\right\rangle\right)$
$\Uparrow\left(\Downarrow\right)$	Etats de spin d'un trou lourd $\left \frac{3}{2}\right\rangle \left(\left -\frac{3}{2}\right\rangle\right)$ à champ magnétique nul
$\widetilde{\uparrow}\left(\widetilde{\downarrow}\right)$	Etats de spin d'un trou lourd $\left \frac{\tilde{3}}{2}\right\rangle \left(\left -\frac{\tilde{3}}{2}\right\rangle\right)$ sous champ longitudinal
$lpha_{ m d}$	Coefficient de décalage diamagnétique d'un complexe excitonique
γ	Largeur à mi-hauteur d'une transition optique
Al	Aluminium
As	Arsenic
Au	Or
D	Champ magnétique critique au-delà duquel la polarisation nucléaire
D _{c1}	s'effondre lors une rampe de champ magnétique depuis OT
В.	Champ magnétique critique en deçà duquel la polarisation nucléaire est
\mathbf{D}_{c2}	restaurée lors d'une rampe magnétique vers 0T
DE	Metallic Droplet epitaxy (épitaxie par gouttelettes métalliques)
DNP	Dynamic nuclear polarization (polarisation nucléaire en régime
DIVI	dynamique)
Λ^{12} x	Echange coulombien entre la particule 1 sur l'orbitale <i>s</i> et la particule 2
$\Delta_{sp} \Lambda$	sur l'orbitale <i>p</i> pour le complexe X
Ftat s (n ou d)	En référence au modèle atomistique, l'état orbitale de la particule dans son
Etat s (p ou u)	état fondamental (ou états excités)
Ga	Gallium
Ge	Germanium
ge	Facteur gyromagnétique de l'électron
$\sigma^{s(p)}$	Facteur gyromagnétique de l'électron pour l'orbitale s (p).
g _e	(Cette notation est utilisée quand une ambigüité existe)
g_e^\perp	Facteur gyromagnétique transverse effectif du trou sur un état orbital s
g_e^{\parallel}	Facteur gyromagnétique longitudinal effectif du trou sur un état orbital s
g _h	Facteur gyromagnétique effectif du trou sur un état orbital s
$g_{h}^{s(p)}$	Facteur gyromagnétique effectif du trou sur un état orbital s (p).

	(Cette notation est utilisée quand une ambigüité existe
${f g}_{f h}^{\perp}$	Facteur gyromagnétique transverse effectif du trou sur un état orbital s
$g_{ m h}^{\parallel}$	Facteur gyromagnétique longitudinal effectif du trou sur un état orbital s
g _{h1}	Terme diagonal du tenseur gyromagnétique du trou sur un état orbital s
	Terme non diagonal du tenseur gyromagnétique du trou sur un état
gh2	orbital s
He :Ne	(Laser) Hélium-Néon
hh	Trou lourd (heavy hole)
lh	Trou léger (light hole)
L = 1(2)	Les deux valeurs de tension pour lesquelles la polarisation de sortie des
Lin1(2)	lames à retard de phase est linéaire
	Les deux valeurs de tension pour lesquelles la polarisation de sortie des
Lq (3Lq)	lames à retard de phase est circulaire droite ou gauche
MBE	Molecular Beam epitaxy (épitaxie à jets moléculaires)
NIMS	National Institute for Material Science
OHS	Overhauser shift (décalage Overhauser)
OHS _{électron}	Décalage Overhauser de l'électron de conduction
OHS _{trou}	Décalage Overhauser du trou de valence (trou)
$B_n^{e(h)}$	Champ magnétique nucléaire perçu par l'électron (le trou)
DLE	Photoluminescence excitation (spectroscopie d'excitation de la
PLE	photoluminescence)
qbits	Quantum bits (digit quantique)
QD	Quantum dot (boîte quantique)
Ti	Titane
Ti :Sa	(Laser) Titane-Saphir
RMN	Résonance Magnétique Nucléaire
Unité arb.	Unité arbitraire
$X^{n+(-)}$	Exciton positivement (négativement) chargé avec n charges en excès
v +(-)*	Trion positif (négatif) « chaud » : une des charges en excès est sur un état
$\mathbf{\Lambda}$	orbital <i>p</i>

Table des matières

0	Introdu	ction	16
1	Chapit	e 1 : Introduction aux boîtes quantiques (111)	18
1.1	Etud	e de boîtes trigonales de symétrie C _{3v}	18
1.2	Conv	ventions	20
1.3	Règl	es de sélection des transitions optique	21
1	.3.1	Mélange des états dans la bande de valence	22
	1.3.1.1	Symétries des différents états de trous	22
	1.3.1.2	Mélange des états de trous	23
1.4	Struc	cture fine des complexes excitoniques multichargés	24
1	.4.1	Cas des échanges entre électrons	24
	1.4.1.1	Deux électrons	25
	1.4.1.2	Trois électrons	26
1	.4.2	Cas de l'échange coulombien entre états de trous	27
1	.4.3	Cas de l'échange coulombien entre électron et trou	28
1.5	Mag	néto-photoluminescence des complexes	29
1	.5.1	L'électron	29
	1.5.1.1	Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{2V}	29
	1.5.1.2	Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{3V}	30
1	.5.2	Le trou	30
	1.5.2.1	Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{2V}	31
	1.5.2.2	Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{3V}	31
1	.5.3	L'exciton neutre	32
	1.5.3.1	Boîtes de symétrie C _{2v}	32
	1.5.3.2	Boîtes de symétrie C_{3v}	34
1	.5.4	Le trion (X^+, X^-)	36
1.6	Résu	mé de la comparaison entre les boîtes C_{2v} et C_{3v}	36
1.7	Inter	action hyperfine	36
1.8	Spec	tre d'émission de la boîte	40
1	.8.1	Energie de liaison des excitons chargés	40
2	Chapit	re 2 : Description du montage expérimental et des échantillons étudiés	42
2.1	Banc	e de mesure	42
2	2.1.1	Spectromètre	43
2	.1.2	Cryostat	46
			10

2.1.3	Lase	rs	46
2.1.4	Auto	omatisation	47
2.2	Description	on de la tête du microscope confocal	48
2.2.1	Prine	cipe de fonctionnement	48
2.2	2.1.1 Pa	artie centrale	
2.2	2.1.2 Le	e bras d'excitation	50
2.2	2.1.3 Le	e bras de détection	50
2.2.2	Pola	risation	51
2.2	2.2.1 Ca	alibration	51
2.2	2.2.2 Re	ésolution en polarisation	54
2.2.3	Réso	olution spatiale du microscope confocal	54
2.3	Aligneme	ent de la tête de microscope	56
2.3.1	Méth	nodologie expérimentale	56
2.3.2	Opti	misation de la focalisation	57
2.4	Echantillo	ons	58
2.4.1	Méth	node de croissance : Epitaxie par gouttelette	58
2.4.2	Cara	ctérisation des échantillons	59
2.4	4.2.1 Pł	notoluminescence sur des ensembles de boîtes	60
2.4	4.2.2 Eo	chantillon à charge ajustable	61
3 Ch	apitre 3 :	Contrôle de l'état de charge	64
3.1	Principe of	le fonctionnement	64
3.1.1	Sché	ma de bande	65
3.1.2	Mes	ures courant-tension	66
3.2	Mesures of	expérimentales sur les échantillons à charge ajustable	67
3.2.1	Pren	nières mesures	67
3.2.2	Impo	ortance de l'énergie d'émission de la boîte	68
3.2	2.2.1 Bo	oîtes quantiques émettant à des énergies E _{Pl} >1,8eV	68
3.2	2.2.2 Bo	oîtes quantiques émettant à des énergies $E_{Pl} < 1,8eV$	69
3.2.3	Echa	antillons avec une barrière tunnel de 20nm	70
3.2	2.3.1 Tı	ransitions abruptes	71
3.2	2.3.2 Sé	éparation des complexes et complexes fortement chargés	74
	3.2.3.2.1	Intensité en fonction de la tension	76
-	3.2.3.2.2	Orientation de spin par pompage optique dans les structures à	charge
ä	ajustable	78	
3.2	2.3.3 St	ructure fine des complexes chargés	79

3.2.3.3.1	Echange coulombien entre les électrons	87
3.2.3.3.2	Echange coulombien entre les électrons et les trous	87
3.2.3.3.3	Evolution de l'amplitude des termes d'échange coulombien avec	c la
tension app	liquée	90
3.2.3.4 Etat	s excités	90
3.2.3.4.1	Photoluminescence	91
3.2.3.4.2	Spectroscopie d'excitation de photoluminescence	92
3.2.3.4.3	Orientation de spin par pompage optique pour les électrons et pour	r les
trous	96	
3.2.3.4.3.	1 Puissance d'excitation	97
3.2.3.4.3.	2 Résonance d'absorption utilisée pour l'orientation de spin	98
3.2.3.4.3.	3 Champ électrique interne	100
3.2.3.4.3.	4 Résumé	100
4 Chapitre 4 : M	lagnéto-spectroscopie des complexes chargés	102
4.1 Magnéto-sp	ectroscopie en champ longitudinal des boîtes (111) ayant une symétrie	: C _{3v}
103		
4.1.1 Détern	nination des tenseurs de Landé en champ magnétique longitudinal	106
4.1.1.1 Mes	sures de la position des raies de X^{-}	106
4.1.1.2 Mes	sure de la position des raies de X^0	107
4.1.1.3 Evo	lution de g _h avec l'état de charge	108
4.1.2 Variati	ion des valeurs des facteurs g avec l'énergie d'émission des boîtes	110
4.1.2.1 Evo	lution de g _h	111
4.1.2.2 Evo	lution de g _e	112
4.1.3 Magné	éto-spectroscopie des complexes chargés	112
4.1.3.1 Sign	nature magnéto-spectroscopique des complexes	113
4.1.3.2 Ape	rçu général	113
4.1.3.3 Résu	ultats expérimentaux	115
4.1.3.3.1	Trion chaud X ^{-*}	116
4.1.3.3.2	Trion chaud X ^{+*}	121
4.1.3.3.3	L'exciton doublement positivement chargé X ²⁺	128
4.1.3.3.4	L'exciton doublement négativement chargé X ²⁻	129
4.1.3.3.5	L'exciton triplement négativement chargé X ³⁻	131
4.1.3.3.6	L'exciton quadruplement chargé X ⁴⁻	132
4.1.4 Magné	to spectroscopie des transitions 25-40 meV au dessus des transit	ions
électron s-trou s		134

4.2	Conclusion	4
5 C	hapitre 5 : Etudes des interactions entre spins électroniques et nucléaires dans les boîte	S
GaAs	(111) non contraintes	6
5.1	Magnéto-spectroscopie en champ longitudinal des boîtes (111)	7
5.1.	Résultats experimentaux sur le trion positivement chargé X^+ 14	1
5.	1.1.1 Détermination du décalage Overhauser pour les électrons et les trous 14	2
	5.1.1.1.1 Convention utilisée pour la présentation des résultats expérimentaux 14	2
	5.1.1.1.2 Interaction hyperfine avec les trous	3
	5.1.1.1.3 Interaction hyperfine avec les électrons	5
5.	1.1.2 Résultats expérimentaux	5
5.1.2	2 Bistabilité de la polarisation électronique et nucléaire en champ magnétiqu	e
long	itudinal15	2
5.	1.2.1 Résultats expérimentaux	2
5.1.3	3 Effet nucléaire à faible champ appliqué15	8
5.2	Complément sur le trion négativement chargé X ⁻ en champ magnétique longitudina	ıl
	161	
5.3	Magnéto-spectroscopie en champ transverse des boîtes (111)16	6
5.3.	Anisotropie du facteur de landé des électrons dans le plan16	6
5.3.2	2 Effet Hanle	7
5.4	Conclusion16	7
6 C	onclusion : bilan et perspectives16	8
7 A	nnexe : Calcul de l'échange coulombien pour trois électrons	2
8 A	nnexe : Calcul du décalage Zeeman et Overhauser pour les trous 17	4
8.1	Décalage Zeeman	4
8.2	Décalage Overhauser pur17	5
8.3	Effet combiné des décalages Zeeman et Overhauser 17	6
8.4	Extraction du décalage Overhauser à champ magnétique non nul17	6
9 A	nnexe : Magnéto-spectroscopie des transitions électron p-trou s 17	8
9.1	Photoluminescence	8
9.2	Spectroscopie d'excitation de la photoluminescence sous champ magnétique 18	2
10	Annexe : Magnéto-spectroscopie des boîtes GaAs (111) en champ transverse o	u
incliné	: Effet Hanle nucléaire	8
10.1	Excitation non résonante avec la tête forte puissance	8
10.1	.1 Etude en puissance de l'intensité émise par X^+ et X^0	8
10.2	Excitation non résonante 19	1

10.2	2.1 Effet Hanle anormal en champ transverse (Voigt)				
10.2	2.2	Effet Hanle n	ucléaire sous champ magnétique incliné		
1	0.2.2.	Polarisa	tion électronique	196	
1	0.2.2.	2 Bistabili	té en champ magnétique incliné		
1	0.2.2.	8 Rebond	de la polarisation électronique		
10.3	Exci	ation quasi-re	ésonante		
10.4	Con	lusion			
11	Ann	exe : Tables d	es groupes C_{2v} et C_{3v}		
12	Tabl	e des figures .			
13	Tabl	e des tableaux	۲		
14	Réfé	rences			

0 Introduction

Les boîtes quantiques semi-conductrices, objets dont la taille est de l'ordre de 10 nm sont des candidates idéales pour les études d'un certain nombre de phénomènes physiques entre particules. Leur spectre d'énergie est discret comme celui des atomes (Marzin et al 1994). De nombreuses études ont été menées ces trente dernières années sur leur caractère d'émetteur quantique (De Greve et al 2012, Nilson et al 2013, Luxmoore et al 2013, Nowak et al 2014), sur leur utilisation comme mémoire de spin (Poem et al 2010). Dernièrement, l'utilisation des états de valence (trous) pour la manipulation et le stockage des états de spin est privilégiée (Delteil et al 2016). Une avancée majeure pour l'utilisation des boîtes quantiques est la fabrication de dispositifs permettant de contrôler la charge présente dans la boîte (Miller et al 1997, Finley et al 2001, Ediger et al 2007b). La principale méthode de fabrication des boîtes quantiques est basée sur la formation d'îlots nanométriques pour relàcher elastiquement les contraintes entre deux matériaux de paramètres de maille différents (méthode Stranki-Krastanov). La croissance par épitaxie à partir de gouttelettes métalliques permet une plus grande variété dans le choix des substrats et des orientations cristallines. Les boîtes ainsi formées peuvent aussi être non contraintes. La croissance des boîte quantiques sur un substrat (111) conduit théoriquement à la dégénérescence des états brillants de l'exciton neutre (Singh et al 2009) en faisant des candidats idéaux pour la réalisation de sources de paires de photons intriqués en polarisation (Kuroda et al 2013). Par ailleurs, ce type d'orientation cristalline est à l'origine du couplage entre états de trous lourds sous champ magnétique longitudinal : appliqué parallèlement à l'axe de croissance (Dupertuis 2011, Sallen et al 2011, Durnev et al 2013). Dans ce manuscrit nous nous concentrerons sur les étapes de mise au point d'un dispositif de contrôle de la charge pour des boîtes produites par épitaxie par gouttelettes. Ce dispositif permettra de réaliser des études par magnéto-optiques de complexes excitoniques dans cette symétrie particulière (Sallen et al 2011, Oberli 2012), ainsi que celles de l'interaction hyperfine des trous (Eble et al 2009, Desfonds et al 2010, Fallahi et al 2010, Chekhovich et al 2012) dans des boîtes à l'état de spin bien contrôlé.

Ce mémoire est organisé de la façon suivante.

Le premier chapitre rappelle les concepts qui seront utilisés dans le reste du manuscrit. Après, nous ferons un rappel rapide des règles de sélection optique et des mélanges d'états dans la bande de valence. Une attention particulière est portée à l'interaction coulombienne pour

différents systèmes à deux ou trois particules. Nous présentons ensuite une comparaison de l'effet Zeeman pour les électrons et les trous entre les boîtes d'orientation cristalline (100) et (111). Enfin nous rappelons quelques notions sur l'interaction hyperfine des électrons et le mécanisme de polarisation dynamique des noyaux.

Le deuxième chapitre présente le dispositif expérimental utilisé. Le banc de mesure magnétospectroscopique confocal est brièvement présenté. La tête du microscope est ensuite détaillée ainsi que son alignement et sa calibration. Les échantillons étudiés sont ensuite introduits ainsi que leur caractérisation structurale puis les caractérisations effectuées grâce à la spectroscopie de photoluminescence d'ensemble.

Le troisième chapitre présente les progrès réalisés dans le contrôle de la charge pour des boîtes quantiques produites par épitaxie par gouttelettes. L'interaction coulombienne d'échange entre électrons et entre électrons et trous est évaluée pour différents complexes chargés. Nous en déduisons des informations sur l'évolution du recouvrement des fonctions d'onde des orbitales s ou p en fonction du nombre de charges présentes dans la boîte. Pour finir, des études en photoluminescence et en spectroscopie d'excitation de photoluminescence sont menées sur des transitions optiques mettant en jeu des états excités, ouvrant la voie à des méthodes d'excitation intra boîte.

Le quatrième chapitre se concentre sur les études magnéto-spectroscopiques des complexes étudiés au chapitre 3. Le tenseur gyromagnétique des trous a été déterminé pour les particules sur l'orbitale s. Pour les particules sur l'orbitale p, la contribution de spin au tenseur a également été mesurée. Pour l'électron, les contributions orbitalaires et de spin du facteur gyromagnétique ont été mesurées pour les orbitales s et p.

Le cinquième chapitre se consacre à l'interaction hyperfine. Les constantes hyperfines des électrons et des trous sont mesurées dans des boîtes (111). Nous montrerons que le coefficient effectif de couplage hyperfin du trou dépend des constantes du matériau, du champ magnétique appliqué ainsi que du tenseur gyromagnétique des trous. Des phénomènes de bistabilité en champ magnétique longitudinal des polarisations électroniques et nucléaires sont de plus mis en évidence pour le trion positivement chargé X^+ .

1 Chapitre 1 : Introduction aux boîtes quantiques (111)

Le travail présenté dans ce manuscrit est le fruit d'une collaboration riche entre trois laboratoires, tout d'abord le National Institute for Material Science (NIMS) à Tsukuba au Japon où l'équipe de T. Mano produit les échantillons que nous avons utilisés. Puis le Ioffe Physical-Technical Institute à S^t Petersburg en Russie où l'aide apportée en particulier par M. V. Durnev et M. M. Glazov à la compréhension des expériences est primordiale notamment pour l'identification des complexes. Enfin, les expériences de spectroscopie et de magnéto-spectroscopie sont réalisées dans l'équipe optoélectronique du Laboratoire de physique et chimie des nano-objets (LPCNO) sous la direction de B. Urbaszek et T. Amand.

1.1 Etude de boîtes trigonales de symétrie C_{3v}

L'étude des boîtes trigonales de symétries C_{3v} est motivée par la recherche de systèmes où le clivage de la structure fine de l'exciton est suffisamment faible pour permettre la génération de photons intriqués en polarisation. Nous relatons ci-dessous une partie du cheminement qui a conduit à la croissance de ce type de boîtes.

Pour l'émission de photons intriqués à travers la cascade biexciton $(XX^0) \rightarrow exciton (X^0)$ \rightarrow état fondamental (Benson et al 2000), les deux chemins possibles de recombinaison doivent être indiscernables. Or l'interaction coulombienne d'échange entre électron et trou conduit en général au clivage entre deux modes excitoniques orthogonaux, ce qui définit la structure fine de l'exciton à champ nul, qui se traduit par une séparation en énergie des photons émis selon les deux polarisations linéaires indépendantes.

Pour conserver l'intrication dans cette cascade, le clivage de structure fine doit être plus faible que l'élargissement radiatif des transitions optiques étudiées, typiquement de l'ordre du micro-électron volt (µeV) (Akopian et al 2006, Dousse et al 2010, Kuroda et al 2013).

La plupart des puits quantiques produits sur des substrats d'orientation cristalline [001] ont une symétrie théorique de type D_{2d} . Dans cette symétrie les deux excitons linéaires sont équivalents¹, aucun clivage de structure fine ne peut apparaître. L'apparition d'une structure

¹ Ils appartiennent à la même representation de D_{2d} .

fine dans les puits quantiques GaAs/AlGaAs de type II pour des expériences de résonance magnétique nucléaire détectée optiquement (Kesteren et al 1990, Gourdon et al 1992), ou la mesure de battements quantiques liés à cette structure fine dans ces mêmes puits (Van der Poel et al 1990, Mashkov et al 1997) montrent que les interactions ne sont pas gouvernées uniquement par la symétrie de la structure mais que des effets d'interface ou de couplage peuvent abaisser cette symétrie vers une symétrie locale de type C_{2v} . La valeur du clivage augmente avec la diminution de la largeur du puits (Blackwood et al 1994). Les mesures sur des ensembles de boîtes ne permettent pas de déterminer ce clivage d'échange, seules des mesures sur boîte unique confirmeront sa présence pour les boîtes produites dans des puits quantiques sur substrat [001] par fluctuation d'interface (Gammon et al 1996) ou par autoassemblage par la méthode Stranski-Krastanov (Bayer et al 1999). La symétrie D_{2d} nécessite deux interfaces opposées identiques et un potentiel de confinement de symétrie cylindrique²; les boîtes quantiques auto-assemblées ont généralement une forme pyramidale avec deux interfaces très dissemblables. De plus, l'anisotropie du mécanisme de croissance conduit souvent à une base ellipsoïdale (Ma et al 2001). Pour réduire le clivage d'échange et permettre l'intrication, plusieurs méthodes ont été proposées :

• La compensation du clivage par l'application d'un champ électrique dans le plan (Ferreira 2002, Kowalik et al 2005), d'un champ magnétique transverse (Stevenson et al 2006), de recuit (Langbein et al 2004) ou encore l'utilisation des contraintes pour cette compensation (Seguin et al 2005, Seidl et al 2006, Singh et al 2010).

• Des méthodes de sélection des boîtes étudiées, de restriction de la longueur d'onde d'émission détectée ou encore une sélection de la fenêtre temporelle de détection (Akopian et al 2006), ces dernières techniques réduisant de façon significative la brillance des sources de photon intriqués.

Dans les boîtes quantiques de symétrie trigonale C_{3v} , le clivage d'échange est en principe nul (Singh et al 2009). Dans ce cas, l'équivalence des deux interfaces cylindriques n'est plus nécessaire, il suffit que le potentiel de confinement soit trigonal (typiquement une pyramide à trois côtés), et compatible avec l'orientation des liaisons cristallines.

Cette symétrie est obtenue lorsque l'on effectue la croissance sur un substrat orienté suivant l'axe [111], croissance impossible par la méthode Stranski-Krastanov : les contraintes forment des dislocations et non des îlots pour InGaAs. Des boîtes quantiques de symétrie C_{3v} ont été

² Un potentiel de confinement de type prisme droit à base carrée orienté selon [110] et $[1\overline{1}0]$ convient également.

produites grâce à une croissance utilisant un substrat avec des motifs trigonaux (Sugiyama et al 1995, Harmann et al 1997) ou utilisant l'épitaxie par gouttelettes (voir section 2.4.1) pour des boîtes d'InGaAs (Stock et al 2010) ou de GaAs (Mano et al 2010). La déviation de la symétrie trigonale entraîne l'apparition d'un clivage de structure fine généralement plus faible que pour les boîtes produites sur substrat (001), de l'ordre de 10µeV typiquement. Cependant des boîtes en proportion non négligeable présentent un clivage de structure fine plus faible que l'élargissement radiatif, et peuvent donc émettre des photons intriqués. Ceci est vrai pour les boîtes produites par épitaxie par gouttelettes (Kuroda et al 2013) ou par épitaxie sur des substrats avec des motifs trigonaux (Juska et al 2013), sans application de champs externes ni de post-sélection.

De plus, l'épitaxie par gouttelettes métalliques permet la fabrication de boîtes quantiques InAs/InAlAs aux longueurs télécom (1,3 et 1,5 μ m) possédant un clivage de structure fine inférieur à 5 μ eV pour 2% des boîtes (Liu et al 2014). Ces mêmes boîtes sont des émetteurs de photons uniques (Kumano et al 2016), ouvrant la voie à la production de paires de photons intriqués à 1,3 et 1,5 μ m.

Dans ce manuscrit, nous nous intéressons aux boîtes épitaxiées par épitaxie "gouttelette" sur un substrat (111)A. Nous nous concentrerons sur le comportement magnéto-optique de ces échantillons qui ne présente ni couche de mouillage, ni contraintes, et nous en analyserons les spécificités.

1.2 Conventions

Pour les repères cartésiens, l'orientation des axes sera choisi en fonction de l'orientation cristalline. Dans ce manuscrit nous utiliserons :

Pour des boîtes selon l'axe [001], nous prendrons x \parallel [100], y \parallel [010] et z \parallel [001].

Pour des boîtes selon l'axe [111], nous prendrons x $\|$ [11 $\overline{2}$], y $\|$ [$\overline{1}$ 10] et z $\|$ [111] (Sallen et al 2011, Durnev et al 2013).

Pour la notation du spin des particules, nous utiliserons les symboles $\downarrow_{s(p)}$ ou $\uparrow_{s(p)}$ ($\downarrow_{s(p)}$ ou $\uparrow_{s(p)}$) pour les électrons (trous), l'indice indiquant l'orbitale de la particule. Les états singulets (triplets) (voir section 1.4.1.1) seront indiqués par ($\downarrow_s \uparrow_s$)_{S(T)}.

Pour les études effectuées avec la bobine trois axes, les notations des angles sont indiquées en Figure 1. On utilisera donc *B* pour la valeur algébrique du champ magnétique appliqué suivant l'axe choisit et B_z sa projection sur l'axe *z* (direction longitudinale) et B_{plan} sa projection sur le plan *xy* (directions transverses).



Figure 1 : Coordonnées utilisées pour décrire l'angle et la norme du champ magnétique appliqué avec la bobine trois axes.

1.3 Règles de sélection des transitions optique

Après un rappel rapide des règles de sélection des transitions optique dans les boîtes de GaAs, nous nous intéresserons aux différentes possibilités de mélange entre les états de valence en symétrie C_{2v} et C_{3v} . Ces mélanges autorisent des transitions qui sinon seraient interdites dans l'approximation dipolaire électrique.

Les règles de sélection optique dans GaAs massif sont bien connues pour les transitions principales (Zakharchenya et al 1971). Celles à l'œuvre dans les boîtes « droplets » de symétrie C_{3v} sont analogues, et peuvent être aisément déduites des tables de couplages de ce groupe (Koster et al 1963) voir Figure 2 pour les transitions entre états *s* de conduction et de valence (trou lourd ou léger).

GaAs QD,



Figure 2 : Règle de sélection optique pour une boîte quantique GaAs où les trous lourds et légers sont séparés en énergie. Nous pouvons noter que les forces d'oscillateurs s'inversent entre les transitions impliquant des trous lourds ou légers.

Mais pour imaginer toutes les transitions possibles nous allons d'abord nous intéresser aux couplages existant entre les différents états dans les boîtes (111) ayant une symétrie C_{3v} en particulier dans la bande de valence puis nous regarderons plus en détail quelles transitions sont autorisées d'un point de vue des symétries.

1.3.1 Mélange des états dans la bande de valence

Nous allons nous intéresser aux possibilités de couplage entre différents niveaux de trous lourds puis aux couplages entre les trous lourds et légers.

1.3.1.1 Symétries des différents états de trous

Intéressons nous aux couplages entre les trous lourds ou légers présents sur les deux premières orbitales. La boîte ayant une hauteur beaucoup plus faible que sa largeur, l'orbitale p_z est à une énergie bien plus grande et nous la négligerons. Toutes les notations des représentations des différents groupes sont issues du Koster et al 1963.

Les trous lourds (notés *hh*) sont pour les boîtes C_{3v} dans la représentation réductible $\Gamma_5 \oplus \Gamma_6$, les fonctions enveloppes des orbitales *s* étant dans la représentation Γ_1 .

Les orbitales enveloppes de type p se transforment comme x+iy (ou x-iy) pour les orbitales p_x et p_y et se trouvent dans la représentation Γ_3 . L'orbitale p_z se transforme comme z qui se trouve dans Γ_1 (l'orbitale p_z est située à des énergies plus élevées, hors de notre domaine d'intérêt, nous la négligerons donc pour la suite).

- Les trous **lourds** sur les orbitales *s* (*hh*₁) sont dans la représentation $\Gamma_5 \oplus \Gamma_6$.
- Les trous **lourds** sur les orbitales $p_{x(y)}(hh_2)$ sont donc dans les représentations $2 \times \Gamma_4$.

Ajoutons maintenant les différents états de **trous légers** qui sont dans la représentation Γ_4 :

- Les trous **légers** sur les orbitales *s* (*lh*₁) sont dans la représentation Γ_4 .
- Les trous **légers** sur les orbitales $p_{x(y)}$ (*lh*₂) sont donc dans la représentation réductible $\Gamma_4 \oplus \Gamma_5 \oplus \Gamma_6$.

Nous pouvons remarquer que contrairement aux boîtes C_{2V} , les trous légers et lourds sur la même orbitale n'appartiennent pas à la même représentation³.

1.3.1.2 Mélange des états de trous

L'état d'un trou avant couplage est donné par :

$$F_{n}(\vec{r}_{\perp})\chi_{m}(z)u_{\gamma}(\vec{r})$$
⁽¹⁾

Où $\gamma = c, hh, lh, m=1(s), n=1(s), 2(p_{x,y}).$

Nous nous limiterons ici à présenter l'Hamiltonien de Luttinger décrivant les couplages dans

la bande de valence (Ivchenko 2005) dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle, \left| \frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$:

$$H^{Lut} = \begin{pmatrix} F & H & I & 0 \\ H^* & G & 0 & I \\ I^* & 0 & G & -H \\ 0 & I^* & -H^* & F \end{pmatrix}$$
(2)

Où
$$F = (A - B)k_z^2 + (A + \frac{B}{2})(k_x^2 + k_y^2)$$
, $G = (A + B)k_z^2 + (A - \frac{B}{2})(k_x^2 + k_y^2)$

$$H = \sqrt{3}Bk_{z}(k_{x} - ik_{y}), I = -\frac{\sqrt{3}}{2}B(k_{x} - ik_{y})^{2}.$$

³ Les trous lourds et légers sur toutes les orbitales appartiennent à la représentation Γ_5 dans le groupe C_{2v} . Le produit entre la représentation Γ_5 et toutes les représentations hors celle de spin est dans la représentation Γ_5 ce qui autorise les melanges entre tous les états de trous.

Le couplage entre les états de trou lourd et léger ne peut avoir lieu qu'entre trous appartenant à des orbitales différentes. Il y a donc un couplage entre hh_1 et lh_2 et réciproquement entre lh_1 et hh_2 . Ces couplages autorisent donc des transitions entre le deuxième niveau de l'électron e_2 avec le premier niveau de trou lourd hh_1 ou de trou léger lh_1 .

Ceci ne donne que les couplages possibles, mais pour établir les règles de sélection optique, la connaissance plus fine des couplages autorisés au niveau des spins est nécessaire. Ces couplages seront explicités lors de leur utilisation (voir Annexe 9.2).

La séparation en énergie des différents états couplés est importante, les couplages entre ces états devraient donc être faibles. Mais expérimentalement, la luminescence de transitions induites par ces couplages a une intensité seulement un ordre de grandeur plus faible que les transitions principales (voir section 3.2.3.4.1) De plus, des évaluations de ces couplages autour de 10% pour des boîtes (111) d'InGaAs (Karlsson et al 2015) confirment l'importance de ces couplages et contredit l'hypothèse de couplage faible entre états de trou. Mais pour plus de simplicité, ces couplages seront tout de même négligés (force d'oscillateur, effet nucléaire,...) sauf pour expliquer les transitions optiques interdites autrement.

Nous allons étudier des échantillons à charge ajustable. Pour l'étude de complexes chargés, nous nous intéressons à l'échange coulombien entre deux, puis trois particules. Ainsi nous déduirons la force relative des termes d'échange dans les différents complexes.

1.4 Structure fine des complexes excitoniques multichargés

Dans le cas de complexes excitoniques multichargés, plusieurs électrons (ou plusieurs trous) occupent la boîte considérée. Outre l'interaction coulombienne directe entre ces charges, l'interaction d'échange est considérée.

1.4.1 Cas des échanges entre électrons

Nous allons détailler le cas de l'échange entre deux électrons puis l'utiliser pour la détermination des termes d'échange impliquant les trous (trou-trou ou électron-trou).

1.4.1.1 Deux électrons

Conformément aux cas rencontrés dans la pratique, nous allons nous intéresser à l'échange coulombien entre deux électrons, puis nous rajouterons un troisième électron.

Pour traiter le cas à deux électrons nous allons utiliser l'Hamiltonien effectif d'Heisenberg pour l'échange entre deux spins $(\hbar = 1)^4$:

$$H_{ex}^{i,j} = D^{i,j} - \frac{E^{i,j}}{2} \left(1 + 4S^{i} \cdot S^{j} \right)$$
(3)

Où D^{i,j} est le terme direct responsable de l'énergie moyenne du complexe, E^{i,j} le terme d'échange entre les électrons *i* et *j* (responsable de la structure fine) et S^{i(j)} le spin de l'électron *i* (*j*).

Nous obtenons ainsi dans la base définie par deux spins électroniques

$$\left\{ \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \right\} :$$

$$H_{ex}^{ij} = \begin{pmatrix} D^{ij} - E^{ij} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & D^{ij} & -E^{ij} & 0 \\ 0 & -E^{ij} & D^{ij} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & D^{ij} - E^{ij} \end{pmatrix}$$
(4)

Nous en déduisons l'énergie propre $D^{ij} - E^{ij}$ pour les états $\left|\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right\rangle, \left|-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle$ et en diagonalisant le bloc central dans la matrice nous en déduisons l'énergie propre $D^{ij} - E^{ij}$ pour $\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\left|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle + \left|-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right\rangle\right)$ et $D^{ij} + E^{ij}$ pour l'état $\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\left|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle - \left|-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right\rangle\right)^5$. Nous pouvons donc

regrouper les états en fonction de la valeur de $\mathbf{J}^{ij} = \mathbf{S}^i + \mathbf{S}^j$ en deux sous espaces. Les états avec une valeur de $\mathbf{J}^{ij} = 1$ constitueront triplet (notés T_i avec *i* la valeur du spin), l'état avec une valeur $\mathbf{J}^{ij} = 0$ singulet (noté \mathbf{S}_0). L'Hamiltonien pour deux particules peut donc être simplifié en :

$$H_{ex}^{i,j} = D^{i,j} - E^{i,j} \left(J^{ij^2} - 1 \right)$$
(5)

⁴ Les termes d'échange coulombiens non colinéaires (provenant de la symétrie C_{3v}) couplent des états très loin en énergie et seront négligés pour l'électron

⁵ Ce que l'on voit directement sous la forme de l'équation (5).

Cet Hamiltonien est bien diagonal dans la base définie par {T₊₁, T₀, T₋₁, S₀} i. e.

$$\left\{ \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right), \left| -\frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle - \left| -\frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right) \right\} : \\
H_{ex}^{ij} = \begin{pmatrix} D^{ij} - E^{ij} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & D^{ij} - E^{ij} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & D^{ij} - E^{ij} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & D^{ij} + E^{ij} \end{pmatrix}$$
(6)

Deux électrons forment donc quatre états dont trois sont dégénérés à l'énergie D-E (états triplet) et un état à l'énergie D+E (singulet). Ces états sont séparés typiquement de plusieurs meV.

1.4.1.2 Trois électrons

Nous étudions le comportement de trois électrons situés sur trois états orbitaux distincts, car c'est un des états finaux possible de la recombinaison de l'exciton triplement chargé négativement (X^{3-}).

Nous considérerons l'échange coulombien entre deux électrons p (notés p et p') puis nous ajouterons un électron s (noté s) et les termes d'échange entre cet électron s et les états p et p'. Nous obtenons donc :

$$\mathbf{H}_{ex}^{pps} = \mathbf{H}_{ex}^{pp} + \mathbf{H}_{ex}^{ps} + \mathbf{H}_{ex}^{ps}$$
(7)

Ceci nous donne, en utilisant l'équation (5) et en se plaçant dans le cas où la boîte est symétrique avec $E^{p's} = E^{ps}$ et $D^{p's} = D^{ps}$:

$$H_{ex}^{pps} = D^{pp} + 2D^{ps} - E^{pp} \left(J^{pp^2} - 1 \right) - E^{ps} \left(1 + J_z^{pp} S_z^s + J_+^{pp} S_-^s + J_-^{pp} S_+^s \right)$$
(8)

Nous pouvons ainsi obtenir les énergies propres de chaque état créé par les interactions de ces trois spins (voir annexe 7 pour les détails des calculs). Dans ce cas, nous avons donc trois niveaux d'énergie, un quadruplet à l'énergie la plus basse, et deux doublet à plus haute énergie (voir Figure 3).

$$\begin{split} \widetilde{D} - E^{pp'} + E^{ps} & \frac{\left|\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right\rangle_{\psi^{-}} \left|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle_{\psi^{-*}}}{3E^{ps}} & 1 \\ & 3E^{ps} & 2\left(-E^{pp} + E^{ps}\right) \\ & 3E^{ps} & 1 \\ S_{0}^{pp}, \downarrow_{s} \left|s_{0}^{pp}, \uparrow_{s}\right\rangle_{\widetilde{D}} + E^{pp'} - E^{ps} \\ & 1 \\ 2E^{pp'} + E^{ps} \\ & 2E^{pp'} + E^{ps} \\ \end{split}$$

Figure 3 : Les trois niveaux d'énergie liés aux termes de l'échange coulombien à trois électrons sur des orbitales différentes avec les niveaux d'énergie correspondants. Les flèches bleues indiquent les différences d'énergie entre deux états.

Ici $|\mathbf{T}_{i}^{pp},\uparrow_{s}\rangle(|\mathbf{T}_{i}^{pp},\downarrow_{s}\rangle)$ est le produit tensoriel de l'état triplet *i* pour les électrons *p* avec un spin *s* up (down), $|\mathbf{S}_{0}^{pp},\uparrow_{s}\rangle(|\mathbf{S}_{0}^{pp},\downarrow_{s}\rangle)$, le produit de l'état singulet pour les électrons *p* avec un spin *s* up (down), $\psi^{+} = \frac{1}{\sqrt{3}}(1|\mathbf{T}_{+1}^{pp},\downarrow^{s}\rangle + \sqrt{2}|\mathbf{T}_{0}^{pp},\uparrow_{s}\rangle) \equiv \left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\rangle$, $\psi^{+*} = \frac{1}{\sqrt{3}}(\sqrt{2}|\mathbf{T}_{0}^{pp},\downarrow_{s}\rangle + 1|\mathbf{T}_{-1}^{pp},\uparrow_{s}\rangle) \equiv \left|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\rangle$, $\psi^{-} = \frac{1}{\sqrt{3}}(\sqrt{2}|\mathbf{T}_{+1}^{pp},\downarrow^{s}\rangle - 1|\mathbf{T}_{0}^{pp},\uparrow^{s}\rangle) \equiv \left|\frac{1}{2},\frac{1}{2}\rangle$, $\psi^{-*} = \frac{1}{\sqrt{3}}(1|\mathbf{T}_{0}^{pp},\downarrow_{s}\rangle - \sqrt{2}|\mathbf{T}_{-1}^{pp},\uparrow_{s}\rangle) \equiv \left|\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\rangle$ les états définis par les couplages entre états

de spin identique par échange coulombien (voir Chapitre 7).

Dans la partie sur la structure fine de X^{3-} (voir section 4.1.3.3.5) nous nous s'intéresserons aux transitions autorisées entre les états initiaux et les états finaux décrits ici.

1.4.2 Cas de l'échange coulombien entre états de trous

A champ magnétique nul, les états de trous lourds $\left|\frac{3}{2},\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ peuvent être pris comme base de $\Gamma_5+\Gamma_6$ car les deux états sont alors dégénérés. Dans le sous-espace correspondant, les trous peuvent alors être décrits comme un pseudo-spin.

En effectuant la même démarche que dans le cas de deux électrons, nous arrivons alors aux mêmes conclusions. Il s'agit toujours d'échange entre deux particules identiques ayant des fonctions enveloppes similaires, d'extension spatiale comparable, donc l'ordre de grandeur de l'interaction entre deux trous ou deux électrons est équivalent (Ediger et al 2007a).

1.4.3 Cas de l'échange coulombien entre électron et trou

L'interaction entre un électron et un trou est d'un à deux ordres de grandeur plus faible que l'interaction entre deux particules identiques (Akimov et al 2002, Cortez et al 2002). En effet, la symétrie des fonctions de Bloch des électrons et des trous étant différente et l'interaction coulombienne étant scalaire, le recouvrement est plus faible.

Nous pouvons remarquer que la présence d'un trou lève la dégénérescence de l'état triplet, entre les états triplets formés par deux électrons, du fait de l'échange électron-trou ainsi que les dégénérescences entre les états formés par trois électrons sur des orbitales différentes. Développons le cas de l'échange coulombien entre un trou et un triplet d'électron. C'est un cas similaire à celui de trois électrons développé à la section 1.4.1.2, l'équation (7) nous donne ici :

$$H_{ex}^{e_{p}e_{s}h_{s}} = D^{e_{p}e_{s}} + D^{e_{p}h_{s}} + D^{e_{s}h_{s}} - E^{e_{p}e_{s}} \left(\left(J^{e_{p}e_{s}} \right)^{2} - 1 \right) - E^{e_{p}h_{s}} \left(\left(J^{e_{p}h_{s}} \right)^{2} - 1 \right) - E^{e_{s}h_{s}} \left(\left(J^{e_{s}h_{s}} \right)^{2} - 1 \right)$$
(9)

Nous nous limiterons à l'étude d'un triplet d'électron avec un trou $\left|\frac{3}{2}\right\rangle$ pour illustrer cet échange coulombien. En limitant l'équation (9) à la base $\left\{T_1^{ee} \Uparrow\right\}, \left|T_0^{ee} \Uparrow\right\}, \left|T_{-1}^{ee} \Uparrow\right\}$, nous obtenons :

$$\mathbf{H}_{ex}^{ij} = \begin{pmatrix} \mathbf{D}' - \mathbf{E}^{e_{p}e_{s}} - \mathbf{E}^{e_{p}h_{s}} - \mathbf{E}^{e_{s}h_{s}} & 0 & 0\\ 0 & \mathbf{D}' - \mathbf{E}^{e_{p}e_{s}} & 0\\ 0 & 0 & \mathbf{D}' - \mathbf{E}^{e_{p}e_{s}} + \mathbf{E}^{e_{p}h_{s}} + \mathbf{E}^{e_{s}h_{s}} \end{pmatrix}$$
(10)

Avec $D' = D^{e_p e_s} + D^{e_p h_s} + D^{e_s h_s}$. Le trou lève donc la dégénérescence entre le triplet d'électron dont les différents états sont séparés par $\Delta_{triplet} = E^{e_p h_s} + E^{e_s h_s}$.

En utilisant les différents états de charge de la boîte pour l'échange coulombien, nous pourrons évaluer les valeurs des différents clivages d'échanges (électron-électron, électron-

trou). Nous nous intéresserons aussi au Chapitre 3 à l'évolution de l'échange coulombien en fonction du nombre de charges dans la boîte.

1.5 Magnéto-photoluminescence des complexes

Nous allons résumer les études précédentes sur le comportement magnéto-optique des charges puis des complexes excitoniques pour des nanostructures trigonales ayant une symétrie C_{3v} aussi bien en champ longitudinal que transverse (Kunz Thèse 2013). Nous comparerons de plus les comportements en magnéto-optique des boîtes de symétrie C_{2v} et C_{3v} .

1.5.1 L'électron

Le comportement magnétique de l'électron est équivalent dans les boîtes (111) et (001) avec des valeurs du facteur de Landé (facteur g) dans le plan et hors du plan différentes et non nulles.

1.5.1.1 Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{2V}

La forme de l'Hamiltonien effectif au premier ordre est obtenue selon la méthode des invariant de la forme :

$$H_{z} = \left| \mu_{B} \right| \sum_{i=x,y,z} g_{i} \hat{S}_{i} \hat{B}_{i}$$
⁽¹¹⁾

Où \hat{S}_i et \hat{B}_i appartiennent aux mêmes représentations : $(B_x, S_x \in \Gamma_4, B_y, S_y \in \Gamma_2, B_z, S_z \in \Gamma_3)$ Dans le groupe C_{2v} les électrons sont dans la représentation Γ_5 . Le produit de deux électrons dans cette représentation est donné par :

$$\Gamma_5^* \times \Gamma_5 = \Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3 + \Gamma_4 \tag{12}$$

Le champ magnétique longitudinal étant dans la représentation Γ_3 (présente une fois dans la somme des représentations de l'équation (12)), l'effet Zeeman est décrit par un seul terme. Il n'y pas de couplage entre les électrons de spin différent.

De même le champ magnétique transverse est dans la représentation Γ_2 pour B_y et Γ_4 pour B_x , nous avons donc a priori une anisotropie du tenseur gyromagnétique *g* transverse (entre *x* et *y*) mais pas de couplage entre les spins d'électrons.

Pour résumer, l'Hamiltonien Zeeman effectif, déduit par la méthode des invariants est décrit par trois termes réels :

$$\hat{H}_{z}^{e} = \left| \mu_{B} \right| \left(g_{e}^{x} B_{x} \hat{S}_{x} + g_{e}^{y} B_{y} \hat{S}_{y} + g_{e}^{z} B_{z} \hat{S}_{z} \right)$$

$$\hat{H}_{z}^{e} = \frac{\mu_{B}}{2} \left(g_{e}^{x} B_{x} \sigma_{x} + g_{e}^{y} B_{y} \sigma_{y} + g_{e}^{z} B_{z} \sigma_{z} \right)$$
(13)

D'où

$$\Delta_{z}^{e} = \mu_{B} \sqrt{\left(g_{e}^{x}B_{x}\right)^{2} + \left(g_{e}^{y}B_{y}\right)^{2} + \left(g_{e}^{z}B_{z}\right)^{2}}$$
(14)

1.5.1.2 Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{3V}

La même démarche peut être effectuée pour une boîte de symétrie C_{3v} . L'électron est dans la représentation Γ_4 , le produit est donc donné par :

$$\Gamma_4^* \times \Gamma_4 = \Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3 \tag{15}$$

Le champ magnétique longitudinal est dans la représentation Γ_2 présent une fois. Le champ magnétique transverse est dans Γ_3 aussi bien pour B_x que B_y (somme de champ magnétique que nous nommerons dans la suite B_{plan}).

Nous avons donc le décalage Zeeman en énergie pour l'électron décrit par deux termes réels :

$$\hat{\mathbf{H}}_{z}^{e} = \left| \boldsymbol{\mu}_{B} \right| \left(\boldsymbol{g}_{e}^{\perp} \vec{\mathbf{B}}_{\perp} \hat{\vec{\mathbf{S}}}_{\perp} + \boldsymbol{g}_{e}^{z} \mathbf{B}_{z} \hat{\mathbf{S}}_{z} \right)$$

$$\Delta_{z}^{e} = \boldsymbol{\mu}_{B} \sqrt{\left(\boldsymbol{g}_{e}^{\perp} \vec{\mathbf{B}}_{\perp} \right)^{2} + \left(\boldsymbol{g}_{e}^{z} \mathbf{B}_{z} \right)^{2}}$$

$$(16)$$

Avec g_e^z le facteur *g* longitudinal de l'électron et g_e^\perp le facteur *g* transverse de l'électron. Nous vérifierons bien que g_e^\perp est isotrope en section 5.3.1.

1.5.2 Le trou

La différence majeure entre les boîtes de symétrie C_{2v} et C_{3v} se situe sur le comportement magnétique du trou. Commençons par rappeler le comportement des trous dans une boîte C_{2v} .

1.5.2.1 Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{2V}

Les trous sont dans la même représentation que l'électron (Γ_5). La même démarche qu'en section 1.5.1.1 nous mène à l'Hamiltonien effectif :

$$\begin{aligned} \hat{H}_{z}^{h} &= \left| \mu_{B} \right| \left(g_{h}^{x} B_{x} \hat{S}_{x} + g_{h}^{y} B_{y} \hat{S}_{y} + g_{h}^{z} B_{z} \hat{S}_{z} \right) \\ \hat{H}_{z}^{h} &= \frac{\mu_{B}}{2} \left(g_{h}^{x} B_{x} \sigma_{x} + g_{h}^{y} B_{y} \sigma_{y} + g_{h}^{z} B_{z} \sigma_{z} \right) \end{aligned}$$

$$(17)$$

1.5.2.2 Couplage avec le champ magnétique dans une boîte C_{3V}

Les états de trous lourds $\left|\frac{3}{2},\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ sont dans la représentation réductible $\Gamma_5+\Gamma_6$. Le produit de

deux trous dans ces représentations est donné par :

$$\left(\Gamma_{5} + \Gamma_{6}\right)^{*} \times \left(\Gamma_{5} + \Gamma_{6}\right) = 2\Gamma_{1} + 2\Gamma_{2}$$
(18)

Le champ magnétique transverse (B_{plan}) est dans Γ_3 , non présent dans le produit de deux trous, il n'y a donc théoriquement pas d'effet d'un champ magnétique transverse sur les trous.

Le champ magnétique longitudinal étant dans la représentation Γ_2 présente maintenant deux fois, deux coefficients sont nécessaires pour décrire l'effet du champ magnétique longitudinal sur les trous. Un de ces termes comporte des termes non diagonaux non nuls (Durnev et al 2013). Nous avons donc l'Hamiltonien Zeeman pour le trou lourd décrit par deux termes réels :

$$\mathbf{H}_{z}^{h} = \boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z} \left(g_{hl} \hat{\mathbf{S}}_{z}^{h} + g_{h2} \hat{\mathbf{S}}_{x}^{h} \right)$$
(19)

Faisant apparaitre le terme non colinéaire $B_z \hat{S}_x^h$ soit dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle, \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{H}_{z}^{h} \end{bmatrix} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \begin{pmatrix} g_{h1} & g_{h2} \\ g_{h2} & -g_{h1} \end{pmatrix}$$
(20)

Les trous de spins opposés sont donc couplés avec le champ magnétique.

La même démarche montre que ce type de couplage disparaît pour des boîtes de symétries trigonales possédant un miroir dans le plan xy comme C_{3h} (les trous de spin opposé

appartiennent à des représentations différentes et ne se couplent pas) ou D_{3h} (les trous de spin opposé ne se couplent pas sous champ magnétique longitudinal) (Durnev et al 2013).

1.5.3 L'exciton neutre

Nous n'étudions pas des trous ou des électrons séparément mais des complexes composés de trous et d'électrons. Pour l'exemple nous nous intéresserons au cas de l'exciton neutre.

1.5.3.1 Boîtes de symétrie C_{2v}

Nous avons vu en section 1.5.1.1 et section 1.5.2.1 que les électrons et les trous ont un comportement équivalent, nous ne nous intéresserons donc ici qu'aux trous.

Nous allons détailler les termes pour un champ magnétique transverse B_x , B_z et B_y se déduisant en suivant la même démarche que pour B_x .

La table de couplage pour les différentes composantes de \hat{S} est donnée par (Koster et al 1963) :

	$\hat{S}_x\psi_{-1/2}^5$	$\hat{S}_x\psi^5_{+1/2}$	$\hat{S}_y\psi^5_{-1/2}$	$\hat{S}_y\psi^5_{+1/2}$	$\hat{S}_{z}\psi_{-1/2}^{5}$	$\hat{S}_z\psi^5_{+1/2}$
$\psi_{-1/2}^5$	0	1	0	1	i	0
$\psi_{+1/2}^5$	i	0	-1	0	0	-i

Tableau 1 : Table de couplage du groupe C_{2v} entre la représentation Γ_5 et les représentations Γ_4 , Γ_3 , Γ_2 .

Calculons les termes pour B_x .

$$\mathbf{B}_{\mathbf{x}} \left| \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C} \left| \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \right\rangle \rightarrow \left\langle \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \left| \mathbf{B}_{\mathbf{x}} \right| \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C} \left\langle \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \left| \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C}$$
(21)

$$\mathbf{B}_{\mathbf{x}} \left| \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C} \left| \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \right\rangle \rightarrow \left\langle \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \left| \mathbf{B}_{\mathbf{x}} \right| \boldsymbol{\psi}_{-1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C} \left\langle \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \left| \boldsymbol{\psi}_{1/2}^{5} \right\rangle = \mathbf{i} \mathbf{C}$$
(22)

D'où dans la base $\psi^5_{1/2}, \psi^5_{-1/2}$:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{S}_{\mathbf{x}} \end{bmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{i} \mathbf{C} \\ \mathbf{i} \mathbf{C} & \mathbf{0} \end{pmatrix}$$
(23)

En posant C = $ig_{h}^{x}\mu_{B}$, nous obtenons :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{B}_{\mathbf{x}} \mathbf{S}_{\mathbf{x}} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{\mathbf{h}}^{\mathbf{x}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{x}} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{\mathbf{h}}^{\mathbf{x}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{x}} \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{x}}$$
(24)

De même nous obtenons pour B_y et B_z :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{B}_{\mathbf{y}} \mathbf{S}_{\mathbf{y}} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{\mathbf{h}}^{\mathbf{y}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{y}} \begin{pmatrix} 0 & -\mathbf{i} \\ \mathbf{i} & 0 \end{pmatrix} = -\frac{1}{2} \mathbf{g}_{\mathbf{h}}^{\mathbf{y}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{y}} \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{y}}$$
(25)

$$\begin{bmatrix} \mathbf{B}_{z} \mathbf{S}_{z} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{h}^{z} \boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{h}^{z} \boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z} \boldsymbol{\sigma}_{z}$$
(26)

Avec σ les différentes matrices de Pauli, l'Hamiltonien global est donc donné par :

$$C_{2v}: H_{Zeeman,h} = \frac{1}{2} \left(g_h^x \mu_B B_x \sigma_x - g_h^y \mu_B B_y \sigma_y + g_h^z \mu_B B_z \sigma_z \right)$$
(27)

Calculons les différents termes magnétiques. Pour l'exciton dans la base définie par $\langle \uparrow \uparrow \rangle, |\uparrow \downarrow \rangle, |\downarrow \uparrow \rangle, |\downarrow \downarrow \rangle \rangle$, les termes sont calculés en utilisant l'équation (28) :

$$\langle \mathbf{e}, \mathbf{s}_{1}^{'} | \langle \mathbf{h}, \mathbf{s}_{2}^{'} | \mathbf{B}_{x} | \mathbf{h}, \mathbf{s}_{2} \rangle | \mathbf{e}, \mathbf{s}_{1} \rangle$$

$$= \frac{\mu_{\mathrm{B}} \mathbf{B}_{x}}{2} \left[\delta_{\mathbf{s}_{1}, \mathbf{s}_{1}}^{\mathrm{e}, \mathrm{e}} \langle \mathbf{h}, \mathbf{s}_{2}^{'} | \mathbf{H}_{\mathrm{Zeeman}, \mathrm{h}} | \mathbf{h}, \mathbf{s}_{2}^{'} \rangle + \delta_{\mathbf{s}_{2}, \mathbf{s}_{2}^{'}}^{\mathrm{h}, \mathrm{h}} \langle \mathbf{e}, \mathbf{s}_{1}^{'} | \mathbf{H}_{\mathrm{Zeeman}, \mathrm{e}} | \mathbf{e}, \mathbf{s}_{1} \rangle \right]$$

$$(28)$$

Ceci nous amène à la matrice pour B_x , B_y , B_z :

$$C_{2v}: H_{Zeeman,X^{0}}^{x} = \frac{\mu_{B}B_{x}}{2} \begin{pmatrix} 0 & g_{h}^{x} & g_{e}^{x} & 0\\ g_{h}^{x} & 0 & 0 & g_{e}^{x}\\ g_{e}^{x} & 0 & 0 & g_{h}^{x}\\ 0 & g_{e}^{x} & g_{h}^{x} & 0 \end{pmatrix}$$
(29)

$$C_{2v}: H_{Zeeman, X^{0}}^{y} = \frac{\mu_{B}B_{y}}{2} \begin{pmatrix} 0 & g_{h}^{y} & g_{e}^{y} & 0\\ g_{h}^{y} & 0 & 0 & -g_{e}^{y}\\ g_{e}^{y} & 0 & 0 & -g_{h}^{y}\\ 0 & -g_{e}^{y} & -g_{h}^{y} & 0 \end{pmatrix}$$
(30)

$$C_{2v}: H_{Zeeman,X^{0}}^{z} = \frac{\mu_{B}B_{x}}{2} \begin{pmatrix} g_{e}^{z} + g_{h}^{z} & 0 & 0 & 0\\ 0 & g_{e}^{z} - g_{h}^{z} & 0 & 0\\ 0 & 0 & -g_{e}^{z} + g_{h}^{z} & 0\\ 0 & 0 & 0 & -g_{e}^{z} - g_{h}^{z} \end{pmatrix}$$
(31)

Les états brillants $(|\uparrow \Downarrow \rangle, |\downarrow \uparrow \rangle)$ sont couplés avec les états noirs $(|\uparrow \uparrow \rangle, |\downarrow \Downarrow \rangle)$ en champ magnétique transverse (apparition de deux transitions noires) mais pas en champ magnétique longitudinal.

1.5.3.2 Boîtes de symétrie C_{3v}

Pour l'électron, la table de couplage est donnée par :

La matrice hermitienne décrivant les électrons est donc dans la base $\{\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle\}$ donnée par :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{B}_{z} \mathbf{S}_{z} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{e}^{z} \boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mathbf{g}_{e}^{z} \boldsymbol{\mu}_{B} \mathbf{B}_{z} \boldsymbol{\sigma}_{z}$$
(33)

L'équation (19) décrit le comportement des trous. Intéressons nous maintenant à l'énergie des états propres de l'exciton pour une boîte C_{3V} . A champ magnétique nul, deux états brillants et deux états noirs sont séparés en énergie par δ_0 qui représente la somme des contributions d'échange coulombien à courte et à longue portée entre un électron et un trou sur des orbitales *s*. Puis à champ magnétique faible (énergie de l'effet Zeeman et de l'échange coulombien équivalente), les états sont décrits en utilisant l'équation (19) par dans la base définie par $\{\uparrow \uparrow \rangle, |\uparrow \downarrow \rangle, |\downarrow \uparrow \rangle, |\downarrow \downarrow \rangle\}$ en prenant l'origine des énergies au milieu des états noirs et brillants :

$$H_{tot}^{X^{0}} = \begin{pmatrix} g_{e} + g_{h1} - \frac{\delta^{0}}{2} & g_{h2} & 0 & 0 \\ g_{h2} & g_{e} - g_{h1} + \frac{\delta^{0}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -g_{e} + g_{h1} + \frac{\delta^{0}}{2} & g_{h2} \\ 0 & 0 & g_{h2} & -g_{e} - g_{h1} - \frac{\delta^{0}}{2} \end{pmatrix}$$
(34)

Ce qui nous amène aux états propres (en négligeant les couplages diamagnétiques Oberli 2012) en ajoutant la dérive diamagnétique (Sallen et al 2011) :

$$\begin{split} E_{1} &= \frac{1}{2} \Big(g_{e} \mu_{B} B_{z} + \alpha B_{z}^{2} \Big) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2}} + g_{h}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2} + 2 g_{h1} \frac{\delta^{0}}{2} \mu_{B} B_{z} \\ E_{2} &= -\frac{1}{2} \Big(g_{e} \mu_{B} B_{z} - \alpha B_{z}^{2} \Big) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2}} + g_{h}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2} - 2 g_{h1} \frac{\delta^{0}}{2} \mu_{B} B_{z} \\ E_{3} &= \frac{1}{2} \Big(g_{e} \mu_{B} B_{z} + \alpha B_{z}^{2} \Big) - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2}} + g_{h}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2} + 2 g_{h1} \frac{\delta^{0}}{2} \mu_{B} B_{z} \\ E_{4} &= -\frac{1}{2} \Big(g_{e} \mu_{B} B_{z} + \alpha B_{z}^{2} \Big) - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2}} + g_{h}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2} - 2 g_{h1} \frac{\delta^{0}}{2} \mu_{B} B_{z} \\ \end{split}$$
Où α est le coefficient de dérive diamagnétique, les deux premiers niveaux décrivent l'énergie des états « brillants » et les deux suivants celle des états « noirs ». Nous pouvons donc obtenir les fonctions décrivant les écarts d'énergie entre les états « brillants » et les « états noirs » :

$$\Delta E_{b} = g_{e}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\delta^{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} - \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} + 2g_{h1}\frac{\delta^{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \right)$$
(35)

$$\Delta E_{n} = g_{e}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} + 2g_{h1}\frac{\delta^{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} - \sqrt{\frac{\delta^{0^{2}}}{2} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\delta^{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \right)$$
(36)

notés $\Delta E_{b(d)}$ respectivement. En ajustant ces expressions aux spectres expérimentaux obtenus lorsque *B* varie, nous pouvons déterminer précisément les valeurs de g_{h1} et g_{h2} .

Du point de vue de la théorie des groupes, il est impossible en principe de découpler les effets Zeeman et diamagnétique (Oberli 2012). Ces couplages seront négligés ici (voir Figure 59) par contre l'influence de ceux-ci sur l'intensité d'émission de l'exciton en fonction du champ magnétique est importante (voir Figure 4) et peut contribuer à expliquer les anomalies d'intensité entre le champ magnétique appliqué positif ou négatif⁶.



Figure 4 : Intensité d'émission des quatre transitions de l'exciton en fonction du champ magnétique appliqué en se basant sur les travaux et notations de Oberli 2012.

⁶ Dans les faits, nous ne changons pas le sens du champ magnétique mais la polarisation de détection voir Chapitre 4.

1.5.4 Le trion (X⁺, X)

En supposant que les fonctions enveloppes (orbitales) varient peu avec le nombre de charges présentes dans la boîte, nous pouvons considérer les effets coulombiens et Zeeman sur les transitions optiques d'un trion sous champ magnétique comme celles sur un électron et un trou (les signes dépendant du trion et de la transition étudiée). Nous y reviendrons dans la partie dédiée à l'extraction des facteurs g (voir section 4.1.1).

1.6 Résumé de la comparaison entre les boîtes C_{2v} et C_{3v}

Résumons les différences présentées ici entre les boîtes de symétrie C_{2v} et les boîtes de symétrie C_{3v} en ce qui concerne les propriétés magnéto-optiques.

• Pour les boîtes C_{2v} , tous les états de trous peuvent se coupler entre eux (Luo et al 2015) alors que dans les boîtes C_{3v} seuls les trous-lourds (légers) sur les orbitales *s* peuvent se coupler avec les trous légers (lourds) sur des orbitales *p* (en se limitant aux deux premiers niveaux liés).

• Pour les boîtes C_{3v} le champ magnétique longitudinal couple les états de trous lourds entre eux ainsi que les états « noirs » et « brillants » de l'exciton. Aucun de ces couplages n'existe pour les boîtes C_{2v} . De plus pour le trion les transitions interdites en C_{2v} sont autorisées.

• Pour les boîtes C_{3v} le champ magnétique transverse n'a pas d'effet sur les trous et ne couple pas les différents états d'électron ou de l'exciton et du trion. Pour les boîtes C_{2v} le champ magnétique transverse couple les états « noirs » et « brillants » de l'exciton et du trion.

1.7 Interaction hyperfine

Depuis les premières expériences montrant l'effet des spins électroniques sur les noyaux (Knight 1949) ou l'action des spins nucléaires sur les électrons (Overhauser 1953) dans les solides, les effets nucléaires ont été largement étudiés (Meier Zarachenya 1984). Le confinement joue un rôle primordial sur l'efficacité de ces effets. Ainsi, les boîtes quantiques tout comme les défauts dans les semi-conducteurs massifs sont de bons candidats pour l'étude

de l'interaction hyperfine, en particulier vis-à-vis du problème de l'interaction d'un spin (d'électron ou de trou) avec les noyaux des atomes constituant la boîte quantique. Le couplage entre les systèmes de spin électroniques et nucléaires conduit à des effets de bistabilité en puissance (Skiba-Szymanska et al 2008, Belhadj et al 2008), en champ magnétique (Kaji et al 2007, Maletinsky et al 2007, Krebs et al 2008), en polarisation du laser d'excitation (Braun et al 2006, Urbaszek et al 2013) ainsi qu'à des phénomènes plus originaux comme le verrouillage de la fréquence d'absorption sur celle d'excitation (Lai et al 2006).

Dans les boîtes quantiques (et dans les autres nanostructures présentant un fort confinement), les fluctuations de champ nucléaire sont une des causes principales de la dépolarisation du spin des porteurs en l'absence de polarisation dynamique des noyaux (Burkard et al 1999, Merkulov et al 2002, Semenov et al 2003). Un champ magnétique modeste (100mT typiquement pour les électrons) permet de s'affranchir de cet effet, ce champ peut être externe (Colton et al 2004, Braun et al 2005, Petta et al 2005) ou directement le champ nucléaire lié à la polarisation moyenne des noyaux (Sallen et al 2013).

Les électrons et les trous ont des fonctions de Bloch de type différentes, aussi les interactions nucléaires sont de natures différentes pour ces deux particules. Pour les électrons l'interaction est constituée par le terme de contact de Fermi ; pour un électron d'observable de spin \hat{S}^{e} avec un ensemble de *N* noyaux d'observable de spin nucléaire \hat{I}^{j} (Meier Zarachenya 1984), elle est de la forme :

$$H_{hyp}^{e} = \frac{\upsilon_{0}}{2} \sum_{j} A^{j} |\psi(\mathbf{r}_{j})|^{2} \left(2\hat{I}_{z}^{j} \hat{S}_{z}^{e} + \left[\hat{I}_{+}^{j} \hat{S}_{-}^{e} + \hat{I}_{-}^{j} \hat{S}_{+}^{e} \right] \right)$$
(37)

Où $\Psi(\mathbf{r})$ est la fonction enveloppe de l'électron, υ_0 est le volume d'une cellule élémentaire et r_j la position du noyau j, S le spin de l'électron et $\hat{\mathbf{I}}_z$ le spin du noyau j. Le champ Knight (champ magnétique effectif de l'électron sur le noyau) est décrit dans l'approximation du champ moyen par la moyenne prise sur les états nucléaires : $\langle \mathbf{H}_{hyp}^e \rangle = \upsilon_0 \sum_j \mathbf{A}^j |\psi(\mathbf{r}_j)|^2 \langle \hat{\mathbf{I}}_z \rangle \hat{\mathbf{S}}_z$.

Le second terme, de moyenne nulle, est à l'origine des basculements entre les spins électroniques et nucléaires et permet la construction d'une polarisation dynamique des noyaux. Il est traité comme un terme fluctuant au cours du temps : $H_{ff}^{e,j} = h(t) \frac{v_0}{2} \sum_j A^j |\psi(r_j)|^2 (\hat{I}_+^j \hat{S}_-^e + \hat{I}_-^j \hat{S}_+^e)$ où h(t) est une fonction aléatoire d'espérance fe et

présentant un temps de corrélation τ_c (Abragam 1961).

Nous allons maintenant introduire les différents temps caractéristiques de ces interactions pour montrer comment une polarisation nucléaire peut se construire par pompage optique des spins électroniques.

Le point de départ du modèle a été développé en 2006 puis en 2008 (Eble et al 2006, Krebs et al 2008) pour les boîtes quantiques à partir de la théorie de perturbation du deuxième ordre. L'équation d'évolution de la polarisation nucléaire est donnée par :

$$\frac{d\langle \mathbf{I}_{z}\rangle}{dt} = -\frac{1}{T_{1e}} \left[\langle \mathbf{I}_{z} \rangle - \mathbf{Q}_{moy} \left(\langle \mathbf{S}_{z}^{e} \rangle - \langle \mathbf{S}_{z}^{e} \rangle_{0} \right) \right] - \frac{\langle \mathbf{I}_{z} \rangle}{T_{d}}$$
(38)

Où T_{Ie} est le temps de relaxation d'un spin nucléaire par retournement du spin avec un électron, le facteur $Q_{moy} = \sum_{\alpha} I^{\alpha} (I^{\alpha} + 1) / S(S+1)$ (*I* spin nucléaire, *S* spin des porteurs (S=1/2),

 α la proportion de l'élément dans la maille élémentaire) soit une valeur 5 pour tous éléments et leurs isotopes des boîtes de GaAs, T_d est le temps effectif de dépolarisation des noyaux par une autre voie que le champ Knight fluctuant des électrons, $\langle S_z^e \rangle$ est le spin moyen de l'électron suivant l'axe de quantification z, $\langle S_z^e \rangle_0$ est le spin moyen à l'équilibre thermodynamique. L'expression de T_{1e} est donnée dans le cas d'un champ magnétique appliqué suivant z par :

$$\frac{1}{T_{1e}} = \left(\frac{A}{N}\right)^2 \frac{2f_e(1 - f_e)\tau_c}{\hbar^2 + (g_e\mu_B(B_z + B_n)\tau_c)^2}$$
(39)

Avec f_e le facteur d'occupation temporel moyen de la boîte ($0 \le f_e \le 1$).

L'expression prise pour T_d est phénoménologique avec une dépendance quadratique à faible champ qui rend compte de façon simple de l'effet quadrupolaire. Celui ci contribue en effet à dépolariser les noyaux à faible champ B_z (Krebs et al 2008, Urbaszek et al 2013) :

$$\frac{1}{T_{d}} = \frac{1}{T_{d}^{\infty}} + \frac{1}{T_{d}^{0}} \frac{1}{1 + (B_{z} / B_{0})^{2}}$$
(40)

L'équation d'évolution de la polarisation de spin de l'électron est définie par une autre équation :

$$\frac{d\left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle}{dt} = -\frac{1}{T_{ln}} \left[\left(\left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle - \left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle_{0}\right) \right] + \mathbf{G}_{s}^{e} - \frac{\left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle}{\tau_{s}^{*}}$$
(41)

Où T_{ln} est le temps de relaxation d'un spin électronique par retournement du spin de l'électron avec l'un des N noyaux présents dans la boîte ; donné par $T_{ln} = \frac{NQ_{moy}}{f_e(1-f_e)}T_{le}$.

 G_s^e est le taux de génération de spin des électrons injectés optiquement, et τ_s^* est le temps de

relaxation de la densité de spin électronique dans la boîte par les processus autres que ceux liés à l'interaction hyperfine.

En régime stationnaire les équations (38) et (41) se traduisent par un système d'équations :

$$\left\langle \mathbf{I}_{z} \right\rangle = \frac{\mathbf{Q}_{moy} \left(\left\langle \mathbf{S}_{z}^{e} \right\rangle - \left\langle \mathbf{S}_{z}^{e} \right\rangle_{0} \right)}{1 + \frac{\mathbf{T}_{le}}{\mathbf{T}_{d}}}$$
(42)

$$\left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle = \frac{\mathbf{G}_{s}^{e}\mathbf{T}_{ln} + \left\langle \mathbf{S}_{z}^{e}\right\rangle_{0}}{1 + \frac{\mathbf{T}_{ln}}{\tau_{s}^{*}}}$$
(43)

 T_{In} et T_{Ie} étant des fonctions de $\langle \hat{\mathbf{I}}_z \rangle$.L'équation (42) peut donc s'écrire en éliminant $\langle \mathbf{S}_z^e \rangle$ entre les équations (42) et (43) :

$$\langle I_{z} \rangle = \frac{Q_{moy} \left(\frac{G_{s}^{e} T_{1n} - \frac{T_{1n}}{\tau_{s}^{*}} \langle S_{z}^{e} \rangle_{0}}{1 + T_{1n} / \tau_{s}^{*}} \right)}{1 + T_{le} / T_{d}}$$
(44)

qui est une équation implicite par rapport à $\langle \hat{\mathbf{I}}_z \rangle$, car T_{le} et T_{ln} sont fonction de $\langle \hat{\mathbf{I}}_z \rangle$.

Il est donc possible en polarisant optiquement les spins électroniques ($G_s^e \neq 0$) de générer une polarisation nucléaire $\langle I_z \rangle$ en fonction des différents temps caractéristiques du problème central (T_{In}, T_d) et τ_s^* ainsi que du facteur d'occupation moyen de la boîte f_e .

L'interaction hyperfine entre les spins nucléaires et un spin de trou sera présentée au chapitre 5 en parallèle avec les résultats expérimentaux.

1.8 Spectre d'émission de la boîte

Nous allons présenter succinctement une étude de l'énergie de liaison des excitons chargés (trions) en fonction du gap des materiaux constituant la structure et de l'énergie d'émission. Intéressons nous maintenant plus particulièrement aux échantillons étudiés dans ce manuscrit pour avoir un ordre de grandeur des différents gaps optiques présents dans les boîtes de GaAs insérées dans une barrière d'Al_{0,3}Ga_{0,7}As avec une barrière de blocage du courant d'Al_{0,5}Ga_{0,5}As. L'arséniure de gallium a un gap direct d'environ 1,519eV à 4K (toutes les valeurs de gap seront données à 4K). Les barrières ont quant à elles un gap de 1,895eV pour Al_{0,3}Ga_{0,7}As et de 2,079eV pour Al_{0,5}Ga_{0,5}As (Aspnes 1976) (le gap de Al_xGa_{1-x}As devient indirect pour une concentration en aluminium supérieure à 45% et la valeur du gap correspond alors au gap indirect en X). La barrière ne bloque pas aussi efficacement le courant que dans les boîtes InGaAs/GaAs à charge ajustable (Nilson et al 2013).

1.8.1 Energie de liaison des excitons chargés

Intéressons nous maintenant aux énergies de liaison des différents complexes excitoniques en fonction de la longueur d'onde d'émission de la boîte. L'énergie de liaison est définie par l'écart en énergie $E_B(X^{\pm}) = E(X^0) - E(X^{\pm})$ où $E(X^0)$ et $E(X^{\pm})$ représentent les positions moyennes de l'émission à champ nul de l'exciton et du trion respectivement. Dans les échantillons étudiés X^0 correspond toujours à la transition à plus haute énergie, suivie de X^+ puis finalement X^- (en se limitant à l'exciton et aux trions) en allant vers les basses énergies. L'évolution de l'énergie de liaison dépend principalement de l'énergie d'émission de X^0 et donc du confinement dans la boîte quantique en analogie avec les boîtes GaAs (001) produites par épitaxie par gouttelettes (Abbarchi et al 2010). La Figure 5 représente l'énergie de liaison des trions X^+ et X^- . Une valeur positive indique une émission à plus basse énergie. Nous noterons que ces points regroupent les mesures sur des boîtes appartenant à échantillons (111) différents :

• Echantillon à charge ajustable avec une barrière tunnel de 20nm (Bouet et al 2014) ou de 40nm, dans différentes région spatiales et spectrales.

• Boîtes à charge non ajustable (Sallen et al 2012, Sallen et al 2013) (non insérées dans une structure p-i-n).



Figure 5 : Energie de liaison des trions X^+ (bleu) et X^- (rouge) et XX^0 (vert) en fonction de l'énergie d'émission de l'exciton pour différentes boîtes quantiques orientées selon (311)A (a), (100) (b) et (111)A (c). (a-b) sont tirées de Abbarchi et al 2010.

Nous observons une relative stabilité de l'énergie de liaison des trions avec une légère diminution pour les boîtes émettant à plus hautes énergies.

La plupart des études présentées dans ce manuscrit ont été effectuées sur un nombre important de boîtes. Ceci permet donc de faire une « statistique » des effets étudiés. Toutefois, un biais important dans cette statistique est le choix des boîtes quantiques étudiées. Nous n'étudierons que les boîtes quantiques ayant une luminescence intense (comparée aux autres boîtes) (voir section 2.3.2). Pour les études avec des dispositifs à charge ajustable, nous nous concenterons sur les boîtes dont la séparation des états de charge est efficace (avec également une luminescence intense), ce qui est un sous ensemble plus petit encore des boîtes existantes dans notre échantillon.

Une illustration de ces biais sera visible sur les valeurs du facteur de Landé des électrons entre ce travail (voir Figure 62) et la thèse précédente (Kunz Thèse 2013).

2 Chapitre 2 : Description du montage expérimental et des échantillons étudiés

Pour permettre l'étude de boîtes quantiques uniques en magnéto-optique, un système de microscopie confocale (Minsky 1957, Brackenhoff et al 1979, Wilson et al 1984) est utilisé. Il permet de travailler avec un faisceau de détection d'un diamètre d'environ un micron carré pour pouvoir étudier une boîte quantique unique. Le principal enjeu pour l'orientation optique du spin lors de l'observation d'un nano-objet unique est de garder une possibilité de contrôle arbitraire de la polarisation pour la détection et l'excitation.

Après avoir présenté le banc de mesure de façon générale, l'utilisation et l'alignement de la « tête » du microscope est explicitée. Pour finir, nous donnons un aperçu des échantillons étudiés et de leurs propriétés structurales.

2.1 Banc de mesure

Le banc de mesure est représenté en Figure 6, il est composé d'un ensemble de sources lumineuses, ici deux lasers interchangeables (voir section 2.1.3) et d'un système de microscopie confocale (voir section 2.2) attaché à un magnéto-cryostat (voir section 2.1.2). De la sorte, l'utilisateur peut contrôler le champ magnétique appliqué à l'échantillon ainsi que la tension appliquée à l'échantillon. Dans le travail présenté ici, toutes les mesures ont été réalisées à T=4K.



Figure 6 : Schéma des différents équipements du banc de mesure utilisé. Le chemin parcouru par la lumière est représenté en bleu. Les flèches marron indiquent les interactions automatisées entre les équipements.

2.1.1 Spectromètre

La lumière collectée depuis l'échantillon est transportée par fibre optique monomode jusqu'au monochromateur où un système de lentilles adapte l'ouverture numérique de la fibre à celle du monochromateur. Cela a pour conséquence d'augmenter la taille du spot en entrée du monochromateur autour de 20µm de diamètre, ce qui est aussi la taille d'un pixel de la caméra à transfert de charge. La résolution spectrale est donc optimale.

La caméra utilisée est une caméra à transfert de charge refroidie à l'azote liquide (Roper Scientific Spec10-100BR) avec une efficacité quantique de l'ordre de 85%, stable dans la région étudiée ici (690-730nm).

Deux spectromètres ont été utilisés pendant cette étude :

• Au début un simple monochromateur avec une distance focale de 500mm (Acton spectraPro 500i), équipé d'une tourelle à trois réseaux de pas égal à 300, 600, 1200 traits/mm et blazés à 1µm. Le réseau 600 traits/mm est utilisé pour rechercher les boîtes adaptées à une étude. Les mesures les plus précises sont réalisées avec le réseau 1200 traits utilisé au deuxième ordre (sauf indication contraire, toutes les mesures présentées sont effectuées dans cette configuration).

• A partir des mesures quasi-résonantes (voir chapitre 5) un double spectromètre (Acton spectraPro 2500) également équipé d'une tourelle à trois réseaux, dont deux de 150 et de 600 traits/mm et blazés à 500nm, et un réseau holographique de 1800 traits/mm optimisé pour le visible. Les boîtes sont recherchées avec le réseau 600 traits/mm et toutes les mesures (sauf indication contraire) sont réalisées avec le réseau 1800 traits/mm soit une dispersion par étage de 6,47nm/mm (300 traits), 3,14nm/mm (600 traits) et 0,80nm/mm (1800 traits). La taille de la fente intermédiaire peut être ajustée de 20 à 12000µm. Pour toutes les mesures présentées ici, elle est ouverte au maximum afin de conserver une plage d'analyse spectrale suffisante.

Les résolutions des deux systèmes (monochromateur simple à l'ordre deux et double monochromateur) sont comparables $(35\mu eV de largeur à mi-hauteur)^7$ (voir Figure 7 pour le double monochromateur).



Figure 7 : Image du laser He :Ne à travers le double monochromateur pour le réseau 1800 traits avec la fente d'entrée ouverte à $20\mu m$ et la fente intermédiaire ouverte à 12mm. Les points sont les valeurs expérimentales, la ligne rouge est la modélisation de la réponse du spectromètre par une gaussienne.

⁷ La précision de cette estimation est limitée par le nombre de points expérimentaux disponibles pour la modélisation

Le principal avantage du double monochromateur est le taux d'extinction du laser que l'on peut atteindre avec ce système. Couplé avec un filtre passe-bande (Melles Griot FF01-795/150-25) qui se comporte comme une densité optique 5 à 705nm et possède une transmission supérieure à 96% à 720nm, le système permet de travailler avec une bonne réjection du laser pour un écart d'énergie de 40 meV entre l'excitation et la détection (c'est-à-dire de l'ordre de l'énergie d'un phonon optique de 36meV dans GaAs) voir Figure 8. La limite de travail avec la fente entre les deux monochromateurs ouverte au maximum est d'une vingtaine de meV pour l'énergie de séparation. Pour une séparation plus faible entre le signal et le laser d'excitation, la réflexion du laser est trop intense par rapport au signal.



Figure 8: Intensité d'émission d'une boîte quantique sous excitation linéaire, détection co (courbe rouge) ou cross (courbe noire) polarisée avec le laser pour deux énergies de laser: 23 meV au dessus de la transition (points) et 40 meV au-dessus (lignes).Les flèches bleues indiquent la position du laser d'excitation.

Pour la détermination de l'énergie d'émission d'une transition optique, que nous situons au barycentre de la raie d'émission, le nombre de pixels est en général insuffisant. La précision de la détermination de l'énergie de la transition est basée sur la modélisation de l'intensité de la transition par une courbe de type lorentzienne ou gaussienne. La précision dépend alors du niveau de signal par rapport au bruit mais aussi du nombre de pixels de la caméra ayant reçu une intensité non négligeable en fonction du nombre de paramètres utilisés dans le modèle et de la justesse du modèle. Par exemple, pour modéliser un groupe de trois raies spectrales avec trois lorentziennes on utilise 10 paramètres : si le nombre de pixels avec une intensité non négligeable est trop faible (autour de 10-15), plusieurs solutions convenables sont trouvées, ce qui diminue la précision. Dans de bonnes conditions de rapport signal sur bruit pour un nombre suffisant de pixels, notre précision est autour de 1µeV (Belhadj et al 2009, Sallen el

2014), c'est le cas dans la quasi-totalité des expériences présentées dans ce manuscrit où la position spectrale des raies d'émission est mesurée.

2.1.2 Cryostat

Dans cette étude, deux cryostats à circuit fermé d'Hélium avec un niveau de vibration très bas ont été utilisés (Attodry 1000 et Attodry 2000). Leur conception est similaire. Il s'agit de magnéto-cryostat à circulation d'Hélium dont le tube à échantillon est refroidi à 4K. L'échantillon est placé sur trois nano-positionneurs (XYZ) piézo-électriques (Attocube AnP101) fonctionnant pas à pas, donc ne nécessitant pas l'application d'une tension continue, qui possèdent une course de 5mm et un pas minimal de l'ordre de la dizaine de nanomètres. La stabilité est suffisante pour observer la boîte sans réalignement pendant des jours. Lors de l'application d'un champ magnétique, les mouvements induits sont suffisamment faibles pour permettre la détection de la luminescence durant toute l'expérience mais un réalignement est souvent nécessaire après une rampe en champ magnétique au-delà de 5T, afin d'optimiser le signal détecté.

La stabilité suffisante ainsi que la durée des expériences de magnéto-spectroscopie (jusqu'à 30h), nous ont conduit à l'automatisation de la plupart des campagnes de mesures.

La différence entre les deux cryostats utilisés réside dans leurs bobines magnétiques. Le premier (que nous appellerons Atto1000) a une bobine 9T, permettant de varier le champ magnétique *B* de +9 à -9T dans la configuration Faraday ($\vec{B} \parallel \vec{q} \parallel Oz$) ou Voigt ($\vec{B} \perp \vec{q}, \vec{q} \parallel Oz$), *Oz* étant l'axe de croissance de l'échantillon. Le deuxième (Atto2000) permet d'atteindre uniquement 5T suivant cet axe, mais il est équipé de trois bobines orthogonales permettant la création d'un champ magnétique d'orientation quelconque par rapport à l'axe optique dans une sphère de 2T de rayon.

2.1.3 Lasers

Deux types de source laser ont été utilisés durant cette étude : un laser He :Ne (Melles Griot 05-LHP-925 puis 05-LHP-928) pour l'excitation dans la barrière. Nous parlerons plus loin d'excitation non résonante en opposition aux expériences où l'excitation s'effectue sur des transitions intra-boîte (quasi-résonante) grâce à un autre laser, un laser Ti :Sa continu (Coherent 890 Ti :Sa) pompé au moyen d'un laser émettant à 532nm (Coherent Verdi V10).

Quelle que soit la source utilisée, le faisceau est couplé dans une fibre monomode (Thorlabs SM600) avec une lentille de couplage adaptée à chaque couple laser-fibre et placée après deux miroirs permettant de régler finement l'axe de propagation de la lumière par rapport à celui de la fibre.

La puissance d'excitation maximale est d'environ 30μ W avec un He :Ne et 100μ W avec le Ti :Sa. Le diamètre du spot d'excitation étant de l'ordre de 1 μ m², la puissance par unité de surface est donc comprise entre 30 et 100μ W/ μ m². Lorsque nous nous référerons à la puissance nous utiliserons uniquement la valeur de la puissance et non la densité surfacique de puissance (considérant la taille du spot constant d'une expérience à l'autre).

2.1.4 Automatisation

Une partie importante de ma contribution à cet aspect a consisté à améliorer les fonctions du programme Labview de pilotage de l'ensemble expérimental et à en développer de nouvelles. Le programme permet maintenant de réaliser certaines expériences courantes ou répétitives de façon totalement automatique. L'idée générale de l'algorithme est d'utiliser un sous-programme pour chaque type d'expérience différente : par exemple, une rampe en champ magnétique de 0 à 9T avec un pas de 100mT, tout en contrôlant aussi la tension appliquée à l'échantillon et les polarisations d'excitation et de détection. Des tests répétitifs comme les calibrations des lames à cristaux liquides ont été aussi automatisés.

2.2 Description de la tête du microscope confocal

Le microscope confocal utilise des fibres optiques monomodes (Thorlabs SM 600) qui servent aussi de sélecteur spatial pour la détection et l'excitation (le cœur de fibre a un diamètre de 5μ m). La tête de microscope peut être décomposée en trois parties :

- une partie centrale composée de trois lames de verres servant de séparateur de faisceau pour permettre un recouvrement des axes optiques d'excitation et de détection,
- un bras d'excitation définissant l'axe optique de l'excitation et contrôlant la polarisation du laser,
- un bras de détection définissant l'axe optique de détection et contrôlant la polarisation de la photoluminescence émise,
- une lentille asphérique de petite focale (f=1,8mm) et de grande ouverture numérique (N=0,65) servant d'objectif de microscope.

2.2.1 Principe de fonctionnement

2.2.1.1 Partie centrale

Concentrons nous d'abord sur la structure principale appelée tête. Elle est composée de trois lames montées à 90°. Le chemin d'excitation utilise les réflexions (4% de lumière réfléchie) et le chemin de détection utilise la transmission à travers les lames (96% de lumière transmise) voir Figure 9.



Figure 9 : Schéma de la partie centrale de la tête de microscope. Les lames de verre toutes identiques sont représentées en bleu et le chemin optique en rouge.

Pour atteindre une indépendance totale dans la gestion de la polarisation du laser d'excitation ou de la photoluminescence détectée, la tête ne doit pas modifier la polarisation de la lumière transmise ou réfléchie. Or la réflexion (transmission) des lames de verres (96% de transmission 4% de réflexion) dépend de l'orientation du vecteur polarisation de la lumière par rapport au plan de réflexion. On parle de composante *s* (*p*) pour la partie perpendiculaire (parallèle) au plan d'incidence. Une lumière polarisée circulairement ressortira donc avec une polarisation elliptique par rapport à l'axe de propagation après une réflexion ou une transmission. Pour éviter cela, deux lames de verre sont montées à 90° pour que la réflexion sur l'axe *p* de la première lame corresponde à l'axe *s* de la seconde lame. Grâce à cela le taux de polarisation de l'onde transmise est la même quelque soit l'angle d'incidence par rapport au plan de réflexion : les paramètres de Stokes de l'onde ne sont pas modifiés. Le problème de cette méthode est la perte de puissance lors des deux réflexions pour l'excitation : 0,16% (4%×4%) seulement de la puissance d'excitation est transmise.

La tête du microscope est commune à toutes les expériences réalisées, les trois lames de verre sont alignées afin de maintenir la polarisation, de façon à éviter des erreurs systématiques dans la mesure de la polarisation (voir section 2.2.2.1). La stabilité de cette partie est excellente.

Pour des mesures à plus forte puissance d'excitation, une tête ne comportant qu'une lame d'excitation peut être utilisée. La polarisation d'excitation et de détection n'est alors plus arbitraire mais nous pouvons travailler avec un couple excitation, détection soit linéaire, soit circulaire (section 2.3.3 de Bouet 2015 pour plus de détails sur cette configuration). Cette configuration permet d'atteindre des puissances de l'ordre de 200µW avec le laser He :Ne

(soit environ dix fois plus qu'avec deux lames). Elle sera utilisée dans les mesures en champ transverse.

2.2.1.2 Le bras d'excitation

Le bras d'excitation contient une source assimilable à une source quasi-ponctuelle dont l'étendue correspond au cœur de la fibre monomode (environ 5µm de diamètre). Après collimation par une lentille asphérique (Thorlabs C260TME-B) le faisceau passe à travers un polariseur linéaire (Thorlabs GL10-A) qui fixe l'axe de polarisation de l'onde à 45° des axes neutres de la lame biréfringente programmable qui suit (Meadowlark). En fonction de la tension appliquée sur la lame à cristaux liquides, la polarisation d'excitation peut être précisément contrôlée (voir section 2.2.2.1). La polarisation en sortie de la fibre monomode est linéaire et varie en fonction des contraintes dans la fibre. Une lame demi-onde est ajoutée avant le polariseur linéaire pour optimiser l'intensité transmise par le bras en ajustant la polarisation linéaire selon l'axe du polariseur linéaire d'entrée.

2.2.1.3 Le bras de détection

Le bras de détection est basé sur le même principe que celui d'excitation. La photoluminescence passe à travers une seconde lame à cristaux liquides à retard variable. L'onde émise passe ensuite à travers un polariseur linéaire qui sert d'analyseur. Le signal est ensuite focalisé (Thorlabs C280TME-B) sur le cœur d'une fibre monomode identique à celle d'excitation. Nous optimisons le couplage à la fibre de détection de façon à maximiser la puissance du signal détecté.

Les deux bras sont réalignés et re-calibrés avant chaque campagne d'expériences, les lamesretard programmables à cristaux liquides sont calibrées lors d'une procédure décrite en section 2.2.2.1.

2.2.2 Polarisation

2.2.2.1 Calibration

Avant de commencer la calibration des lames-retard, nous calibrons les lames de verre servant de séparateur de faisceaux décrites en section 2.2.1.1.

Pour effectuer cette tâche, il faut s'assurer que les axes p et s des deux différentes lames de verre coïncidents parfaitement pour l'excitation et pour la détection. Pour cela, nous envoyons un laser polarisé circulairement sur un bras donné et nous mesurons l'intensité transmise en fonction de l'angle de rotation d'un polariseur linéaire (voir Figure 10). Le diagramme en représentation polaire obtenu permet de vérifier si la lumière transmise est bien polarisée circulairement.



Figure 10: Diagramme polaire de l'intensité transmise par les voies d'excitation (bleu) et de détection (rouge) de la tête du microscope confocal pour un faisceau polarisé circulairement généré par un laser He :Ne, un polariseur linéaire et une lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polarisation de l'analyseur. La référence est obtenue par mesure de l'intensité transmise par le laser, le polariseur linéaire et la lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polariseur linéaire et la lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polariseur linéaire et la lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polariseur linéaire et la lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polariseur.

Le taux de polarisation circulaire est mesuré comme étant :

$$\operatorname{Pol}_{\operatorname{circ}} = \sqrt{1 - \operatorname{Pol}_{\operatorname{lin}}^2 - \operatorname{Pol}_{\operatorname{diag}}^2}$$
(45)

Où Pol_{diag} est la polarisation diagonale et Pol_{lin} est la polarisation linéaire mesurée selon une base linéaire donnant le taux de polarisation linéaire maximal :

$$\operatorname{Pol}_{\operatorname{lin}} = \frac{\operatorname{I}_{\max} - \operatorname{I}_{\min}}{\operatorname{I}_{\max} + \operatorname{I}_{\min}} \tag{46}$$

 I_{max} (I_{min}) étant le maximum (minimum) d'intensité transmise lors de la rotation du polariseur linéaire de détection. Nous pouvons vérifier que si la polarisation linéaire est définie avec les extrema d'intensité du diagramme polaire, la polarisation diagonale est nulle.

La conservation de la polarisation dans la partie centrale (les lames de verres) est excellente ($P_{circ,det} = 99.6\%$ et $P_{circ,exc} = 99.9\%$: limite théorique de notre précision sur la mesure de polarisation circulaire), nous allons maintenant nous concentrer sur la calibration des deux bras.

La première partie de la calibration des bras consiste à vérifier que la base définie par les polariseurs linéaires d'excitation et de détection a des axes orthogonaux. Pour cela, nous réalisons l'extinction du faisceau transmis à travers les deux polariseurs par rotation du second.

Puis la lame à cristaux liquides est insérée entre les deux polariseurs linéaires (voir Figure 11). Une nouvelle extinction est obtenue lorsque l'un des axes neutres de la lame et le plan de polarisation défini par le premier polariseur linéaire sont alignés. Nous faisons ensuite tourner la lame de 45° autour de son axe.



Figure 11:(a) Principe de fonctionnement d'une lame à cristaux liquides. La tension appliquée fait tourner les molécules des cristaux liquides changeant le retard appliqué à la lumière. (b) Le montage utilisé pour calibrer les lames à cristaux liquides. Nous pouvons noter que le polariseur est celui qui sera utilisé dans le bras d'excitation ou de détection.

Il reste à déterminer les valeurs de tension auxquelles la polarisation est intéressante pour notre étude, c'est-à-dire les deux polarisations linéaires (Lin1, Lin2) correspondant à une lame neutre ou demi-onde respectivement et les deux polarisations circulaires (Lq, 3Lq) correspondant à une lame quart d'onde ou trois quart d'onde respectivement. Pour cela, les courbes de l'intensité transmise par le système en fonction de la tension sont réalisées dans trois configurations. Les axes optiques des deux polariseurs linéaires sont ici colinéaires, orthogonaux ou avec un angle intermédiaire arbitraire. Les maxima (minima) d'intensité sont obtenus pour une tension où la lame se comporte comme une lame neutre (Lin1) ou demi onde (Lin2) alors que le point de croisement des trois courbes donne les tensions où la lame se comporte comme une quart d'onde (Lq) ou trois quart d'onde (3Lq) (voir Figure 12).



Figure 12: Intensité transmise à travers la lame à cristaux liquides pour trois différentes positions de l'analyseur : colinéaire avec le polariseur (noir), orthogonale (bleu) ou un angle aléatoire (rouge). En orange les tensions à appliquer pour avoir les quatre polarisations qui nous intéressent.

La tension à appliquer dépendant de la longueur d'onde, la calibration est faite :

• Pour l'excitation avec He :Ne si l'excitation est non résonante ou en utilisant un Ti :Sa continu réglé à 710 nm pour l'excitation intra-boîte sur des boîtes émettant autour de 720nm.

• Pour la détection, avec le Ti :Sa réglé à la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques étudiées (souvent autour de 720nm) ou avec une diode laser émettant à 690 nm. La calibration est ensuite affinée en fonction de la longueur d'onde précise d'émission des boîtes si leur émission est polarisée.

2.2.2.2 Résolution en polarisation

Après avoir déterminé les valeurs de tension pour les différentes polarisations de la lumière, nous testons le taux de polarisation circulaire de la lumière obtenue pour les deux valeurs Lq et 3Lq, de la même façon que lors de la calibration des lames (voir section 2.2.2.1 et Figure 13).

Le réglage du dispositif est considéré comme acceptable sur chaque voie pour nos expériences si le taux de polarisation circulaire mesuré est supérieur à 99%. Dans le cas contraire, nous reprenons la calibration depuis la détermination de l'axe neutre de la lame à retard.



Figure 13:Diagramme polaire de l'intensité transmise en fonction de l'angle entre l'analyseur et le polariseur pour une polarisation circulaire créée par la lame à cristaux liquides. Le taux de polarisation circulaire atteint est mesuré ici à $P_{circ}=99,8\%$.

2.2.3 Résolution spatiale du microscope confocal

Pour mesurer la résolution spatiale du système, nous utilisons un réseau métallique avec un pas de 5µm de large que nous collons sur les nano-positionneurs. La période spatiale du réseau est donc constituée de deux zones de 2,5µm qui ont une réflexion différente séparées par un bord dont l'épaisseur est négligeable par rapport à la taille de notre spot laser. Nous mesurons l'intensité réfléchie par le réseau illuminé par un laser en fonction du temps lors d'un mouvement continu des nano-positionneurs. Le pas du réseau permet de convertir ce temps en distance parcourue, c'est-à-dire en position sur le réseau. Nous calculons la dérivée

du signal d'intensité qui a la forme spatiale du spot laser convolué avec une fonction créneau représentant le réseau. Cette dérivée suit une loi gaussienne lors de la traversée des bords du réseau. L'ajustement d'un modèle gaussien sur les résultats donne une valeur de taille de l'image de la source laser à mi hauteur de 900 ±50nm (voir Figure 14). Si nous nous intéressons à la taille de l'image pour laquelle l'intensité est inférieure à $\frac{1}{e^2}$ (95% de la

lumière contenue dans cette aire), on trouve une taille de spot de l'ordre de $1,5\mu m$ pour une source laser à 633 nm (laser He :Ne).



Figure 14 : Dérivée de l'intensité réfléchie d'un réseau avec un pas de 5 μ m illuminé par un laser He :Ne - 6328Å) avec la lentille asphérique (focal 1,8mm et ouverture numérique 0,65) utilisée comme objectif de microscope.

Nous avons mesuré avec le même réseau les vibrations du cryostat Atto1000 en nous plaçant en l'un des points où l'évolution de l'intensité avec le déplacement du réseau est la plus forte. Nous mesurons l'évolution de l'intensité reçue en fonction du temps lors du fonctionnement du cryostat pour déterminer les vibrations (voir Figure 15). Nous trouvons une amplitude pour les vibrations de l'ordre de 25 nm pic à pic. Les vibrations ne sont donc pas un problème lors des mesures, elles sont environ 50 fois inférieures à la taille de l'image de la source laser (ainsi qu'à la zone analysée en détection).



Figure 15 : Test d'immunité du banc expérimental aux vibrations du cryostat à circuit fermé d'hélium : Intensité réfléchie par le réseau placé dans le cryostat Atto1000 en fonction du temps, la durée totale de la mesure (typiquement 30s) est plus longue que la période typique des vibrations du cryostat (0,5s).

2.3 Alignement de la tête de microscope

2.3.1 Méthodologie expérimentale

L'alignement de la tête du microscope est réalisé avec deux lasers. Un premier suit le chemin d d'excitation passant par le bras d'excitation. Le deuxième suit quant à lui le chemin de détection en sens inverse. Le premier objectif à atteindre est que les faisceaux soient parallèles à l'axe du banc optique contenu dans l'insert tubulaire du cryostat. Pour cela nous vérifions que lors du déplacement du plan de l'échantillon selon l'axe *Oz* du faisceau avec les moteurs piézo-électriques, les deux taches lumineuses créées par focalisation des faisceaux grâce à l'objectif du microscope restent fixes : leurs centres ne se déplacent pas, seules leurs tailles augmentent.

Dans un deuxième temps, tout en gardant les faisceaux parallèles, nous réalisons le recouvrement des deux spots pour que la zone détectée corresponde parfaitement à la zone illuminée sur l'échantillon. Pour cela, la sortie de la fibre du bras d'excitation est déplacée, l'angle d'arrivée sur les cubes est aussi modifié pour récupérer l'angle induit par le déplacement de la lentille.

Pour finir, la confocalité des deux faisceaux est réalisée en réglant le point focal de la lentille du bras d'excitation selon l'axe optique local. La collimation en sortie de la fibre d'excitation

n'est donc pas parfaite, l'erreur de collimation permettant de corriger l'effet des aberrations chromatiques de la lentille asphérique utilisée comme objectif.

2.3.2 Optimisation de la focalisation

Du fait de l'emploi d'une lentille asphérique dans notre objectif de microscope, la distance focale dépend de la longueur d'onde utilisée. La confocalité est donc meilleure pour les boîtes émettant à une longueur d'onde proche de la source utilisée (690 nm pour la diode ou autour de 720 nm pour le Ti :Sa). L'intensité collectée pour les boîtes à cette longueur d'onde sera donc meilleure. Nous privilégierons toujours une bonne distance focale pour la détection.

Ce point est encore plus critique quand l'excitation passe de non résonante à quasi-résonante. En effet, la différence de distance de travail entre ces deux types d'excitation est telle que, pour la compenser, il faudrait déplacer la lentille du bras d'excitation de façon macroscopique. Le déplacement nécessaire serait supérieur à la course de la vis micrométrique. Ceci entraînerait des mouvements mécaniques dans toute la tête du microscope. Nous avons donc décidé que lors des campagnes où l'excitation quasi-résonante est utilisée, l'alignement se fait avec le laser Ti :Sa. Le spot d'excitation avec le laser He :Ne étant alors partiellement défocalisé, l'intensité d'excitation des boîtes en excitation non-résonante est plus faible que lors d'une campagne classique où l'alignement est réalisé avec le laser grâce au laser He :Ne. Cependant ce réglage permet d'effectuer commodément des campagnes expérimentales axées principalement sur des expériences en excitation quasi-résonante.

2.4 Echantillons

2.4.1 Méthode de croissance : Epitaxie par gouttelette

Les échantillons étudiés sont produits au National Institute for Material Science (NIMS) à Tskuba au Japon dans l'équipe de Neul Ha, Takaaki Mano, Takashi Kuroda et Kasuaki Sakoda. Une technique d'épitaxie par jet moléculaire modifiée (MBE) appelée épitaxie par gouttelettes métalliques (DE, on parle aussi de « Metallic droplet epitaxy ») (Koguchi et al 1991) à basse température est utilisée. Celle-ci n'est pas basée sur les contraintes (comme l'est l'épitaxie de type Stranki-Krastanov) et ne nécessite donc pas le recours à des matériaux possédant des paramètres de maille différents. Nous allons illustrer le principe de fonctionnement avec la fabrication de boîtes quantiques de GaAs. Sur un substrat d'AlGaAs, des gouttes de Ga (métalliques) sont formées. Puis à basse température (200°C), sous un flux d'As ces gouttes cristallisent en îlots de GaAs. Ceux-ci sont ensuite recouverts d'une couche d'AlGaAs (voir Figure 16) après une remontée de la température à 500°C.



Figure 16 : Processus d'élaboration des boîtes quantiques (111) par épitaxie à jet moléculaire : les gouttes métalliques de gallium agissent comme des centres de nucléation des boîtes quantiques de GaAs. Ce procédé est une illustration. Lors de la production des échantillons étudiés dans ce manuscrit, les épaisseurs peuvent différer.

Cette méthode permet donc une plus grande flexibilité à la fois dans le choix des matériaux et de l'orientation cristalline. Pour ce qui nous intéresse, elle permet la croissance de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs sur un substrat GaAs (111)A (Mano et al 2010) ce qui n'est pas possible avec la méthode Stranki-Krastanov (Joyce et al 1997). Un avantage supplémentaire

de cette technique est la possibilité d'éviter la formation d'une couche de mouillage lors de la croissance, ce qui permet un meilleur confinement électronique et un découplage plus important des états électroniques des boîtes. Nous pouvons par cette méthode obtenir une très grande variété de nano-objets (voir Figure 17)



Figure 17 : Différents nano-objets obtenus par épitaxie par gouttelettes pour des boîtes quantiques mais aussi des nano-fils, ou des structures plus complexes comme des anneaux couplés (Mano et al 2005, Mano et al 2010, Jo et al 2010, Jo et al 2010, Jo et al 2012).

2.4.2 Caractérisation des échantillons

Lors de la croissance des échantillons, un plan de boîtes supplémentaires est déposé au sommet de l'échantillon pour des études par microscopie à force atomique. La densité de boîtes déduite de ces études est de l'ordre de 10^9 par cm². Elles révèlent certaines informations sur la forme des boîtes. Celle-ci peut être contrôlée en particulier par la température utilisée lors de la cristallisation sous flux d'arsenic (Jo et al 2012).

Des études structurales par microscopie à effet tunnel pratiquées sur la tranche d'échantillons clivés (X-STM), menées sur les boîtes que l'on fait croître sur un substrat d'orientation cristalline (001) produites au NIMS, ont été réalisées par l'équipe de Koenraad à Eindhoven

au Pays Bas. Celles-ci ont montré une interdiffusion de l'Aluminium dans les boîtes comprise entre 0 et 10% (Bocquel et al 2014, Keizer et al 2010). Il existe par contre une couronne riche en Aluminium présente au dessus des boîtes pour les boîtes avec un facteur de forme important ou une taille importante (Bocquel et al 2014).

Ces études ont aussi confirmé l'absence de contrainte (attendu GaAs et AlAs ayant le même paramètre de maille) dans les boîtes GaAs épitaxié sur AlGaAs orienté suivant l'axe (001) (Keizer et al 2010).

2.4.2.1 Photoluminescence sur des ensembles de boîtes

Après la fabrication, les échantillons sont caractérisés (au NIMS) par des expériences de photoluminescence réalisées sur des ensembles de boîtes (voir Figure 18).



Figure 18 : Intensité de photoluminescence en fonction de la longueur d'onde d'émission pour des ensembles de boîtes. L'insert représente un agrandissement du domaine spectral des boîtes étudiées dans ce manuscrit. Les énergies d'émission sont données à titre indicatif sur l'axe du haut.

Nous notons que l'émission des boîtes est repartie de 670 à 870 nm (1,425 à 1,851eV) ce qui montre une énorme dispersion de la taille des boîtes lors de la croissance. Nous n'étudierons ici que des boîtes dont la longueur d'onde est comprise entre 690 et 730 nm (soit entre 1,698 et 1,797eV). Cela permet aussi de faciliter l'étude d'une boîte unique en les discriminant spectralement : avec le réseau 1800 traits, nous observons une fenêtre spectrale d'environ 10 nm (25 meV) aux longueurs d'onde des boîtes.

La densité de boîtes est autour de 10^9 cm² (voir section 2.4.1) soit 10 boîtes par micron carré. Ceci nous ramène à environ une boîte par micron carré pour chacune de nos fenêtres spectrales et donc 1,4 boîte pour notre taille de spot.

Un autre point à remarquer est l'importance du pic à 660 nm. Ce pic provient de l'émission dans la barrière d'AlGaAs. Cette brillance peut être liée aux défauts dans la barrière dont la croissance est réalisée à basse température, ce qui entraîne une mobilité très faible des porteurs et la présence de nombreux défauts, source d'états localisés. Cela peut aussi expliquer la difficulté à réaliser l'orientation de spin par pompage optique avec une excitation dans la barrière (voir section 3.2.3.2.2).

2.4.2.2 Echantillon à charge ajustable

Les échantillons étudiés sont représentés en Figure 19. Sur un substrat de GaAs orienté suivant l'axe cristallographique [111], une couche de type *n* dopée au silicium à $N_D = 10^{18}$ cm⁻³ joue le rôle de réservoir d'électrons couplé aux boîtes quantiques par une barrière tunnel de 20-40 nm. Les boîtes sont ensuite recouvertes d'Al_{0.3}Ga_{0.7}As. Une couche d'Al_{0.5}Ga_{0.5}As est ajoutée pour diminuer le courant dans la structure. Nous pouvons noter que l'Al_{0.5}Ga_{0.5}As est un semi-conducteur à gap indirect, et la symétrie des états de conduction dans la vallée L diffère de celle des états dans la vallée Γ d'Al_{0.3}Ga_{0.7}As. Les gaps de ces différents semi-conducteurs ont été brièvement introduits en section 1.8.



Figure 19 : Schéma de la structure de l'échantillon, le GaAs est représenté en vert et l'AlGaAs en marron. Le paramètre qui varie entre les échantillons est la largeur de la barrière tunnel.

Ces dispositifs permettent de contrôler la charge dans la structure, c'est-à-dire le nombre d'électrons (ou de trous). L'intérêt de ces structures est double, premièrement elles permettent l'étude des complexes excitoniques fortement chargés (plus de deux électrons pour un trou ou inversement) étudiés au Chapitre 3 mais aussi de séparer les complexes ce qui simplifie les études en particulier en magnéto-spectroscopie où il est nécessaire d'identifier un grand nombre de raies spectrales (voir Chapitre 4).



Figure 20 : Photo d'un échantillon à charge ajustable contacté et attaché au nano-positionneurs.

Le chapitre suivant montre les performances obtenues avec différents échantillons vis-à-vis de l'ajustement de la charge en se focalisant sur l'échantillon avec une barrière tunnel de 20nm (Bouet et al 2014).

3 Chapitre 3 : Contrôle de l'état de charge

Le contrôle de la charge en insérant une structure de type diode autour des boîtes permet la séparation des complexes grâce au champ électrique (Miller et al 1997, Warburton et al 2000, Finley et al 2001, Ediger et al 2007b) et donc d'augmenter la brillance des sources de photons intriqués. Des dispositifs de contrôle de charge d'une efficacité comparable à ceux des boîtes Stranski-Krastanov n'avaient pas encore été réalisés pour des boîtes fabriquées par épitaxie par gouttelettes.

Ces dispositifs à contrôle de charge permettent de simplifier grandement l'identification de l'état de charge de la boîte étudiée. En effet les raies spectrales d'un complexe excitonique possédant le même état de charge (singulet et triplet par exemple) vont apparaître et disparaître pour la même tension appliquée. Des complexes excitoniques où un porteur occupe un état excité (électron ou trou sur l'état *p*) ont une durée de vie suffisante pour être observés dans ces systèmes. Ce chapitre est dédié à montrer les progrès récents en matière de contrôle de la charge. Nous commencerons par présenter le principe de fonctionnement du dispositif puis nous nous intéresserons aux conditions permettant un bon contrôle de la charge. Nous analyserons ensuite l'échange coulombien que nous évaluerons. Enfin, nous avons mis en evidence grâce au contrôle de la charge, des complexes excités émettant à plus haute énergie et presentons l'orientation des spins des porteurs par pompage optique en excitation quasi-résonante. Cette technique sera ensuite utilisée dans toutes les mesures présentées dans les chapitres suivants.

Les boîtes quantiques sont dénommées par une lettre (nous étiquetons les boîtes par ordre alphabétique) qui recommence à A au début de chaque mois. Pour une identification complète, nous ajouterons les trois ou quatre premières lettres du mois et l'année de la mesure.

L'identification des complexes excitoniques qui a permis de vérifier le contrôle de l'état de charge sera traitée au chapitre 4.

3.1 Principe de fonctionnement

La structure de l'échantillon est celle décrite en section 2.4. Une électrode semi-transparente en Ti/Au est déposée sur la partie supérieure de l'échantillon voir Figure 21. Ceci permet l'application d'une tension de \pm 2 V ce qui correspond à \pm 55 kV.cm⁻¹ en plus du champ interne de la structure.



Figure 21: Schéma de principe d'un échantillon à charge ajustable avec des motifs carrés de $10\mu m$ pour laisser passer la lumière. La transmission de l'électrode semi transparente est de T=60%.

3.1.1 Schéma de bande

Intéressons nous maintenant à la structure de bande ainsi créée et donc au comportement électrique de la structure. Nous allons décrire qualitativement la structure de bande des électrons. La présence d'une couche dopée n ou p (réservoir d'électrons ou de trous) proche du plan de boîtes quantiques permet de contrôler le nombre d'électrons présents dans la structure par effet tunnel (Miller et 1997). En effet, l'application d'une tension va modifier les bandes du semi-conducteur par la création d'un champ électrique dans la partie intrinsèque du dispositif (voir Figure 22). Lorsqu'un niveau électronique de la boîte quantique passe sous le niveau de la mer de Fermi, un électron du réservoir (ici n-AlGaAs) peut être transféré vers un état localisé dans la boîte quantique.



Figure 22: Schéma de bande d'une structure à charge ajustable, le niveau de Fermi est représenté en bleu pour une tension appliquée nulle (traits pleins) ou non nulle (pointillés), tous les niveaux énergétiques de la boîte situés en dessous sont occupés du fait de l'effet tunnel. L'application d'un champ électrique modifie les bandes de conduction. Les zones de déplétion étant relativement étroites. Nous approximons le champ électrique dans la partie intrinsèque par un champ uniforme. Le potentiel électrostatique varie donc de façon quasi-linéaire dans cette zone (voir section 2.1.1 de Eble 2006).

La différence de gap étant faible entre $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ et $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ (voir section 1.8), la structure est moins efficace pour bloquer le courant que d'autres structures GaAs/AlGaAs ou GaAs/InAs. A partir d'une certaine tension (tension de seuil), le courant n'est plus négligeable, le fond lumineux augmente, et les charges présentes dans les boîtes sont soumises à des fluctuations temporelles de potentiel électrostatique. Ceci se manifeste par un élargissement des raies d'émissions détectées.

3.1.2 Mesures courant-tension

Un générateur de courant/tension (Keitley 2401) est utilisé pour relever les caractéristiques courant-tension de la structure. Celui-ci sert donc aussi d'ampèremètre.

Lors des premiers tests sur les structures à charges ajustables, des mesures du courant en fonction de la tension ont été réalisées sous éclairement (laser incident sur une ouverture semi-transparente) pour six boîtes quantiques différentes : trois par électrode pour deux électrodes différentes (voir Figure 23). Les mesures dans l'obscurité ne donnent des courants mesurables que pour des tensions supérieures à la tension de seuil avec notre dispositif. Les caractéristiques courant-tension sont celles d'une diode polarisée en direct.



Figure 23 : Courant en fonction de la tension appliquée sous éclairement, pour l'électrode 1 (ligne continue, E1) et l'électrode 2 (pointillé, E2) en deçà (a) et au delà (b) de la tension correspondant à des bandes plates.

L'épaisseur de la zone intrinsèque est estimée à 370nm pour avoir un ordre de grandeur du champ électrique appliqué. Toutes les mesures (autres que des caractéristiques courant-tension) présentées dans la suite le seront en fonction de la tension appliquée.

Nous observons que le courant en deçà de la tension de seuil de la diode est négatif, du fait du photo-courant induit par l'éclairement. Il ne semble pas dépendre de l'électrode mais plutôt de

la boîte choisie et de l'efficacité d'absorption du laser à cet endroit précis. Par contre, le courant circulant dans la structure au-delà de la tension de seuil de la diode semble ne dépendre que de l'électrode. Les tensions de bande-plate obtenues pour les deux électrodes présentées ici sont équivalentes. Nous avons donc des échantillons où nous pouvons contrôler le champ électrique interne. Intéressons-nous maintenant à l'évolution de la photoluminescence de ces échantillons en fonction de la tension appliquée.

3.2 Mesures expérimentales sur les échantillons à charge ajustable

3.2.1 Premières mesures

L'échantillon étudié a une barrière tunnel séparant le réservoir d'électrons de la couche de boîtes (élément critique de ce dispositif nous y reviendrons) de <u>40 nm</u> (Figure 19). Pour mémoire, voici les spectres obtenus dans des structures qui ne sont pas à charge ajustable (Figure 24a) (Kuroda et al 2013) ou avec les premiers échantillons à charge ajustable obtenus par le NIMS (Figure 24b) (S Kunz 2013).



Figure 24 : (a) Spectre de photoluminescence d'une boîte GaAs (111) sans dispositif de contrôle de charge extrait de Kuroda et al 2013. (b) Cartographie de l'intensité d'émission de la luminescence d'un échantillon à charge ajustable (barrière tunnel 30nm) pour des boîtes GaAs (100) en fonction de la tension extrait de la thèse de Sergei. Kunz 2013.

La première mesure effectuée montre bien que la tension a une influence sur la photoluminescence. Mais la séparation des complexes n'est pas nette (voir Figure 25).



Figure 25 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée avec le réseau 1200 trait/mm à l'ordre 2 pour QDA-oct2013.

3.2.2 Importance de l'énergie d'émission de la boîte

Les seuils caractérisant les différents états de charge des boîtes varient fortement en fonction de l'énergie d'émission des boîtes. L'énergie d'émission change drastiquement de 50-150 meV, lorsque la taille de la boîte varie fortement, ce qui change l'espacement entre les niveaux d'énergie, le confinement, les énergies d'échange coulombien,...

Nous présentons les différents résultats pour des boîtes émettant de 1,82eV à 1,7eV en les séparant en deux catégories en fonction de leur énergie d'émission.

3.2.2.1 Boîtes quantiques émettant à des énergies E_{PI}>1,8eV

Commençons par nous intéresser aux boîtes émettant à haute énergie, objet de l'étude principale de la thèse précédente dans l'équipe (S Kunz 2013). Différents états de charge sont présents (voir Figure 26), les mêmes que pour une boîte sans dispositif de contrôle de charge : trion positivement chargé X^+ (deux trous, 1 électron), exciton X^0 (un trou, un électron), biexciton XX^0 (deux trous, deux électrons) et trion négativement chargé X^- (un trou, deux électrons). L'identification a été réalisée grâce à une étude magnéto-optique en champ longitudinal (voir section 4.1). Hormis X^+ qui a une plage d'existence « seul » autour de 0,3V, la séparation des complexes n'est pas nette pour les boîtes émettant dans ce domaine d'émission (autour de 1,81eV, voir Figure 26).



Figure 26 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour une boîte à haute énergie QDD-oct2013. Les étiquettes indiquent l'état de charge de la transition (X pour une paire électron-trou, et l'exposant indique les charges en excès (« + » pour les trous et « –» pour les électrons).

3.2.2.2 Boîtes quantiques émettant à des énergies E_{PI}<1,8eV

Nous avons cherché à étudier des boîtes émettant dans un domaine différent de celles précédemment étudiées. La séparation des complexes excitoniques est en général peu efficace pour les boîtes émettant à plus basse énergie, mais des complexes plus chargés, très difficiles à obtenir avec des échantillons sans contrôle de la charge apparaissent (voir Figure 27) : X^{2+} (trois trous, deux électrons), trion chaud X^{+*} (deux trous dont un excité sur un état p, un électron), X^{-*} (un trou, deux électrons dont un excité sur un état p), biexciton chargé XX^{-} (2 trous, 3 électrons). Dans une boîte de plus grande taille, le nombre d'états liés est plus important et l'espacement des niveaux d'énergie est plus faible. Il est donc plus facile d'avoir des états excités au niveau de la mer de Fermi pour une tension donnée. Dans les boîtes émettant à plus haute énergie (donc a priori de plus petite taille) en revanche, les états p de l'électron ne sont pas nécessairement confinés dans la boîte. Il semblerait que ce soit le cas au vu des expériences d'excitation quasi-résonante sur des boîtes émettant à 690 nm sans dispositif de contrôle de la charge.

Pour augmenter la séparation des différents complexes chargés, nous avons fait la comparaison avec des échantillons identiques mais présentant une barrière tunnel plus faible. Le NIMS a alors proposé de fabriquer des échantillons avec une barrière tunnel de 20 et 30 nm.



Figure 27 : Cartographie de l'intensité d'émission pour quatre boîtes quantiques émettant à plus basse énergie. Les étiquettes indiquent l'état de charge de la boîte. (a) bleu coups<100, rouge coups>6000, (b) bleu coups<100, rouge coups>1000, (c) bleu coups<100 rouge coups>5000, (d) bleu coups<100, rouge coups>4850.

Avec une barrière tunnel de 40 nm, les échantillons permettent déjà l'observation de complexes fortement chargés (trion chaud, biexciton charge, X^{2+}) mais la séparation des complexes chargés peu efficace, voire inefficace pour les complexes négativement chargés. La section suivante est dédiée à l'étude de la nouvelle série d'échantillons présentant une meilleure sélectivité en tension pour la séparation des différents complexes excitoniques.

3.2.3 Echantillons avec une barrière tunnel de 20nm

Les mêmes mesures sont réalisées sur les échantillons avec une barrière tunnel de 20 nm. Les courbes courant-tension sont équivalentes (voir Figure 28). Pour toute la suite de ce manuscrit, les études magnéto-optiques et des effets nucléaires dans les boîtes seront analysés sur ce type d'échantillon.


Figure 28 : Caractéristiques courant-tension pour les échantillons avec une barrière tunnel de 20m réaliséz sous éclairement pour la boîte quantique QDB-fev2014.

Nous pouvons noter que la capacité de ces échantillons à bloquer le courant est moindre que celle des échantillons précédents (à comparer avec Figure 23). Le champ électrique pour lequel on atteint les conditions de bande plate (courant nul) est plus faible donc les tensions à appliquer sur l'échantillon le seront aussi (la zone intrinsèque étant de 350nm contre 370 précédemment). Ce courant parasite peut apporter des fluctuations de charge. Pour certaines boîtes étudiées ci-dessous, la modélisation par une gaussienne sera meilleure que par une lorentzienne. Ceci indique des fluctuations aléatoires de l'énergie d'émission, que nous attribuerons à ce courant parasite. Cet effet sera aussi observé pour certaines boîtes sous excitation quasi-résonante malgré la plus faible quantité de charges injectées optiquement.

Nous allons aussi présenter les différents comportements des boîtes quantiques en fonction de la tension appliquée pour des énergies d'émission différentes.

3.2.3.1 Transitions abruptes

Des transitions abruptes entre les complexes chargés $X^+ X^-$ et X^0 sont observées pour certaines boîtes de l'échantillon présenté en Figure 29.



Figure 29 : Cartographie de l'intensité d'émission pour deux boîtes avec des transitions abruptes entre X^0 et X^- et un élargissement de la transition optique de X^- aux deux bords du plateau.

C'est au milieu de chaque domaine d'existence en tension des complexes que la stabilité de l'état de charge est la plus grande. Le taux de transfert par effet tunnel avec le réservoir d'électrons est réduit de plusieurs ordres de grandeur (Dreiser et al 2008, Dalgarno et al 2008). La largeur des raies d'émissions est ici minimale. Au contraire, sur les bords des plateaux, la charge devient très instable. Les temps caractéristiques de l'effet tunnel peuvent devenir plus courts que les temps radiatifs et l'élargissement des raies spectrales peut dépasser celui dû aux fluctuations électrostatiques autour de la boîte. L'élargissement est alors gouverné par le temps tunnel. Sur les bords des plateaux, le temps tunnel gouverne l'élargissement des raies pour la plupart des boîtes (voir section 3.2.3.2 et Figure 30).

Dans la pratique, les largeurs minimales typiques des raies relevées dans ces échantillons sont de l'ordre de 50µeV que l'excitation soit non-résonante ou quasi-résonante (rappelons que la résolution de notre spectromètre est de 35µeV).



Figure 30 : Largeur à mi-hauteur de X^{-} en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014 (rouge) et QDB-feb2014 (noir).

Le domaine de tension d'un plateau correspondant à un état de charge donné dépend de l'intensité d'excitation (voir Figure 31). Les charges photo-générées induisent un potentiel électrostatique correspondant à un décalage sur les tensions extrémales d'environ 0,2V sur les différents plateaux entre une puissance d'excitation de 50nW et une puissance de 30μ W (Smith et al 2003).



Figure 31 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014 pour différentes puissances d'excitation.

3.2.3.2 Séparation des complexes et complexes fortement chargés

L'étude de boîtes émettant à plus faible énergie autour de 1,720 eV (720 nm) a permis la détection de complexes chargés allant de X^{2+} à X^{4-} avec une bonne séparation en tension des domaines de chacun d'eux (voir Figure 32) en particulier pour ceux négativement chargés (Bouet et al 2014). L'identification des complexes se base premièrement sur les études en champ électrique :

• La tension appliquée : si un complexe apparaît à tension plus élevée, il comporte plus d'électrons en excès.

• La structure fine (environ 200µeV) liée à l'échange coulombien entre les électrons et les trous (Urbaszek et al 2003)

• La structure fine (environ 5meV) liée à l'échange coulombien entre les particules identiques sur des orbitales différentes, ici *s* et *p*.

Cependant, afin de lever toute ambigüité dans l'identification des raies d'émission, nous verrons au chapitre 4 que le comportement en champ magnétique donné par les études magnéto-spectroscopiques est un autre outil puissant d'identification. Il donne une signature sans équivoque du complexe considéré (voir 4.1.3.1).



Figure 32 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-feb2014. Les étiquettes indiquent les états de charge identifiés, les flèches indiquent les transitions associées à un même complexe excitonique. Le singulet associé à XX⁻ n'est pas visible avec cette échelle de couleur.

Afin d'analyser les résultats présents dans la Figure 32, nous allons d'abord nous intéresser à l'évolution de l'intensité d'émission de chaque complexe en fonction de la tension et discuter les mécanismes de formation associés. Puis nous nous intéresserons à la structure fine des complexes chargés ($X^{2+} X^{+*} X^{-*} XX^{-} XX^{-}$ et X^{3-}). Enfin nous décrirons la luminescence associée aux transitions électron *p*-trou *s*, transitions autorisées dans cette symétrie comme vu en section 1.3.1.2 mais de plus faible intensité que les transitions électron *s*-trou *s*.

Pour visualiser la séparation des différents complexes excitoniques grâce à la tension appliquée, i.e. les plages de tension où la grande majorité des photons émis proviennent d'une seule transition, les spectres sont montrés pour différentes tensions en Figure 33. Ceci permet de discriminer le rôle joué par les différents complexes pour un effet donné. Par exemple, cela sera utilisé pour séparer les contributions de X^+ et X^- sur l'interaction hyperfine dans les boîtes (voir Chapitre 5).



Figure 33 : Intensité d'émission de QDP-feb2014 pour différentes valeurs de tension appliquée. A partir de X⁻, nous pouvons considérer que tous les photons émis proviennent du même complexe.

3.2.3.2.1 Intensité en fonction de la tension

Un plateau avec une intensité maximale au centre est la forme attendue pour l'intensité du signal de photoluminescence des complexes excitoniques en fonction de la tension. C'est ce que nous trouvons pour les complexes négativement chargés pour lequel la sélectivité en tension est la meilleure (à partir de X^-) voir Figure 34.

Pour les zones de tension où différents complexes coexistent, la dépendance est plus compliquée. En fait, suivant la zone de tension, le mécanisme de formation prédominant peut changer. Prenons le domaine de tension compris entre -0,3 et 0,35V où le spectre d'émission de X^0 possède trois pics : X^0 coexiste avec X^{2+} et X^- (voir Figure 34).

• Pour les champs électriques les plus forts dans la jonction (tension négative pour nous), les électrons sont instables dans la structure, ils ont tendance à s'échapper par effet tunnel en dehors de la boîte. Le résultat final de la capture d'une paire électron-trou est donc en moyenne une boîte chargée à un trou. Nous pouvons donc arriver à un état où une boîte est en moyenne chargée avec un trou avant capture d'une autre paire électron-trou (Ediger et al 2005). Après capture, nous avons donc formé X^+ , complexe où l'électron peut être stabilisé par la présence des deux trous. Si l'un des trous a un temps caractéristique d'échappement proche du temps radiatif, X^0 aura aussi une luminescence non négligeable.

• Le même raisonnement peut avoir lieu pour les tensions les plus faibles avec un électron résidant à la place d'un trou.

• Pour les tensions intermédiaires, l'état stable avant capture est vide et après, la coexistence de $X^+ X^0$ et X^- montre que les temps de capture d'un électron ou d'un trou sont comparables au temps de vie radiatif.

Pour confirmer ces hypothèses, des expériences de corrélation de luminescence entre les différents complexes seraient nécessaires. Ces phénomènes avec différents pics d'intensité ont aussi été observés dans d'autres expériences sur les charges ajustables (Finley et al 2001, Van Hattem et al 2013).



Figure 34 : Intensité de luminescence pour différents complexes en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014. Pour les complexes dont la structure fine est un doublet, seule l'intensité de la transition la plus brillante est montrée ici.

3.2.3.2.2 Orientation de spin par pompage optique dans les structures à charge ajustable

Ici le pompage est effectué avec un faisceau continu d'énergie supérieure au gap de la barrière d'AlGaAs (laser He :Ne à 1,959eV).

L'efficacité de l'orientation de spin de l'électron a été mesurée sur X⁺, complexe permettant de mesurer (en régime stationnaire) la polarisation de l'électron au moment de sa recombinaison (les deux trous formant un singulet de spin). Nous observons une polarisation électronique importante seulement pour les tensions les plus négatives de la plage d'existence en tension de X⁺. Cependant, la faible intensité d'émission dans ce domaine ne nous a pas permis de faire des études plus poussées à ces tensions (voir Figure 35). Pour que la polarisation de l'électron soit conservée, il faut que la recombinaison radiative ait lieu avant que l'électron ne se dépolarise. La perte, recapture d'un électron, semble improbable dans cette gamme de tension : le champ électrique interne dans la structure est élevé. Le mécanisme de dépolarisation vient donc probablement du « co-tunneling » (Dreiser et al 2008) mécanisme qui entraîne le retournement conjoint d'un spin d'électron de la boîte et d'un spin d'électron dans la mer de Fermi. La polarisation mesuré (~ 28%) résulterait de la probabilité plus importante de recombinaison radiative par rapport à celle du co-tunneling. Pour les faibles tensions, la largeur de X⁺ est plus importante donc le temps de vie plus court ce qui explique la polarisation plus élevée.

Le taux de polarisation modéré (28%) peut s'expliquer en partie :

• par l'absence d'une polarisation des spins nucléaires par pompage optique à même de masquer les fluctuations de champ nucléaire (Merkulov et al 2002, Braun et al 2005, Sallen et al 2014)

• par un pompage optique dans la barrière d'AlGaAs qui limite la polarisation des électrons photo-générés à 50%. Ce problème peut être résolu en utilisant une excitation intraboîte (voir Chapitre 5).



Figure 35: Polarisation circulaire (gauche) et intensité en échelle logarithmique (droite) de X+ pour QDG-fev2014 en fonction de la tension appliquée.

3.2.3.3 Structure fine des complexes chargés

Intéressons nous maintenant à la structure fine issue de l'échange coulombien des differents complexes.

Rappelons les principaux points vus en section 1.4 concernant l'échange coulombien.

Les termes d'interaction coulombienne entre les particules comprennent des termes directs, responsables de l'énergie moyenne des raies d'émission des différents complexes et éventuellement des termes d'échange, responsables de la structure fine du spectre d'émission. Pour ces derniers termes, les termes d'échange entre particules de même charge (électron-électron) ou (trou-trou) sont les plus importants et donnent parfois lieu au clivage entre états singulets et triplets, par exemple, dans le cas des complexes doublement chargés X^{2+} et X^{2-} . Ils sont de l'ordre de 5meV.

Les termes les plus petits correspondent à l'interaction d'échange électron-trou, qui quand elle existe est de l'ordre de 100µeV (voir Tableau 2).

Selon qu'un complexe apparaît dans l'état initial d'une transition optique ou dans l'état final, nous observons dans certains cas des signatures spectrales en « miroir » à l'instar du couple de transitions $XX \rightarrow X$ et $X \rightarrow$ état fondamental. Ici, nous observons cet effet entre $XX^{-} \rightarrow X^{-*}$ et $X^{-*} \rightarrow$ électron *p*. Les différentes interactions coulombiennes sont résumées ci-dessous pour les complexes négativement chargés (voir Figure 36) et pour les complexes positivement chargés (voir Figure 37).



Figure 36 : Schéma des complexes négativement chargés pour l'un de leur état initial (haut) et l'un de leur état final (bas) après recombinaison. Les termes d'interaction coulombienne sont représentés en rouge pour des particules différentes (électron-trou) et bleu pour des particules de charge négative identique (électron électron). Les états confinés successifs de conduction ou de valence (c,v) sont étiquetés s,p. Les triangles pleins (creux) symbolisent l'état de spin des électrons (trous).



Figure 37 : Schéma des complexes positivement chargés pour l'un de leur état initial (haut) et l'un de leur état final (bas) après recombinaison. Les termes d'interaction coulombienne sont représentés en rouge pour des particules différentes (électron-trou) et vert pour des particules de charge positive identique (trou-trou). Les états confinés successifs de conduction ou de valence (c,v) sont étiquetés s,p,...

Nous allons préciser les expressions des termes d'échange coulombien responsables de la structure fine pour différents complexes. Les mesures de ces structures fines seront ensuite présentées.

Nous nous concentrerons sur les complexes négativement chargés, les complexes positivement chargés sont leurs symétriques en intervertissant les électrons et les trous.

Commençons par le trion chaud (X^{*}) . Ce complexe possède deux électrons un sur l'orbitale *s* et l'autre sur *p* et un trou sur l'orbitale *s*.

Pour l'état initial, l'échange coulombien entre deux électrons conduit à quatre états (voir section 1.4.1.1). La présence du trou quant à elle lève la dégénérescence entre les états triplets (voir section 1.4.3).

L'état final est un électron p, c'est-à-dire deux états dégénérés.

Les transitions optiques en polarisation σ^+ sont représentées en Figure 38.



Figure 38 : Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X^{-*} à champ magnétique nul. Les flèches bleues (vertes) indiquent les écarts en énergie entre les niveaux séparés par l'échange entre électron-électron (électron-trou). Les nombres entre parenthèses indiquent les rapports de force d'oscillateur.

La signature spectroscopique du trion chaud négativement chargé est donc un doublet issu des états triplets ainsi qu'une transition seule issue du singulet à plus haute énergie.

Le biexciton chargé négativement (XX⁻) a pour état final l'état initial de X^{-*} et son état initial est composé de deux états dégénérés (électron p avec deux singulets de trous et d'électrons sur les orbitales s). Sa signature spectroscopique est donc aussi un doublet issu des états triplets et une transition issue du singulet à plus faible énergie.

Intéressons nous maintenant à l'exciton doublement négativement chargé (X²⁻).

Son état initial est équivalent à celui d'un exciton chaud (un trou s et un électron p) en plus d'un singulet d'électron sur les orbitales s. Il y a donc quatre états doublement dégénérés pour l'état initial.

L'état final est quant à lui composé de deux électrons sur les orbitales s et p, ce qui nous amène à quatre états dont trois sont dégénérés (cas traité en section 1.4.1.1).

Les transitions optiques en polarisation σ^+ sont représentées en Figure 39.



Figure 39: Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X^{2-} à champ magnétique nul. Les flèches bleues (vertes) indiquent les écarts en énergie entre les niveaux séparés par l'échange entre électron-électron (électron-trou). Les nombres entre parenthèses indiquent les rapports de force d'oscillateur.

La signature spectroscopique de l'exciton doublement négativement chargé est donc un doublet issu des états triplets ainsi qu'une transition seule vers l'état singulet à plus basse énergie.

Intéressons nous maintenant à l'exciton triplement négativement chargé (X^{3-}) .

L'état initial est composé d'un trou et de quatre électrons : un singulet sur l'orbitale *s* et deux électrons sur les orbitales *p*. Nous allons seulement aborder le cas où les deux électrons sont sur des orbitales *p* différentes⁸. L'état initial est donc composé de quatre états : trois états triplets non dégénérés par la présence d'un trou et un état singulet à plus haute énergie.

L'état final est quant à lui constitué de trois électrons sur des orbitales différentes. Comme vu en section 1.4.1.2, à champ nul, le triplet d'électrons forme huit états qui sont à trois énergies différentes.

Pour la structure fine du triplet nous ne nous étions intéressés qu'à l'état quadruplet. Si nous ajoutons les quatre autres états, les transitions autorisées à champ nul sont maintenant au nombre de six (voir Figure 40) mais les transitions vers chaque état final sont séparées de plusieurs meV.

⁸ Dans le cas contraire où les deux électrons p sont sur la même orbitale, l'état initial est alors deux singulet sans structure fine et l'état final un singulet sur les orbitales p et un électron s sans structure fine.



Figure 40: Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X^{3-} à champ magnétique nul. Les flèches bleues indiquent les écarts en énergie entre les niveaux. Les nombres entre parenthèse indiquent les rapports de force d'oscillateur. Les états finaux sont nommés avec les notations du Chapitre 7.

La transition depuis les états singulets d'électron p est à plus haute énergie par rapport au triplet. Il y a aussi un doublet à plus faible énergie venant des transitions qui recombinent sur les états ψ^- et ψ^{-*} . Le schéma global de recombinaison à champ nul est donné en Figure 41.



Figure 41 : Schéma récapitulatif des transitions pour X^{3-} à champ nul pour un état initial avec les deux électrons *p* sur des orbitales différentes.

Les termes d'échange coulombien entre les électrons (s ou p) et les trous (s ou p) peuvent être déduits pour les différents complexes en mesurant les clivages entre les différentes raies d'émission (voir Figure 42)



Figure 42 : Spectre complet de photoluminescence de X^{2-} , les échanges électron-électron (bleu) se mesurent entre les états triplet et le singulet. L'échange électron-trou se mesure entre les différentes raies d'émission du triplet (rouge).

Nous allons d'abord nous intéresser aux complexes négativement chargés (voir Figure 36). La présence de l'interaction coulombienne dans l'état final change le signe de cette interaction comparée à la même interaction dans l'état initial.

	QDP-feb2014	QDN-sept2014	QDU-sep2014	QDQ-feb2014	QDF-nov2014	
$\delta_0 X^0$	250	260	300	280	240	
$\delta_1 X^0$	<1	12	10	10	9	
$\Delta^{eh}_{sp} X^{2+}$	125	105	140	105	/	
$\Delta^{eh}_{sp} X^{\scriptscriptstyle +*}$	180	185	150	175	165	
$\Delta_{ps}^{eh} X^{-*}$	220	210	245	220	210	
$\Delta_{ps}^{eh} XX^{-}$	215	205	250	220	220	
$\Delta_{ps}^{eh} X^{2}$	145	120	150	145	130	
$\Delta_{ps}^{eh} XX^{2}$	145	150	175	160	150	
$\Delta^{\rm eh}_{\rm ps} X^{3-}$	70	65	60	75	65	
$\Delta^{eh}_{ps} X^{-^*}_{e_p-h_s}$	170	155	180	180	/	
$\Delta^{eh}_{ps} X^{2-}_{e_p-h_s}$	140	120	145	140	110	
$\Delta^{eh}_{ps} X^{3-}_{e_p-h_s}$	70	115	805	100	/	
$\Delta_{\rm ps}^{\rm ee} X^{-*} / XX^{-}$	4800	5200	/	3950	/	
$\Delta_{ps}^{ee} X^{2-}$	7700	6152	6250	7000	6200	
$\Delta_{ps}^{ee} X^{3-}$	6650	6150	/	6250	5500	

Tableau 2 : Table des paramètres de structure fine liée aux termes d'échange coulombien des différents complexes (entre les électrons et les trous (*eh*) et entre électron-électron (*ee*)) observés pour cinq boîtes différentes. Les valeurs sont en μ eV. Les barres d'erreurs sont de l'ordre de 1μ eV pour δ_l , 50 μ eV pour les échanges électrons-électrons et de 5 μ eV pour les termes d'échanges trous-électrons et électrons-trous.

Nous pouvons premièrement noter que le confinement quantique important des électrons et des trous est confirmé par les valeurs de δ_0^9 (voir section 1.5.3.2) autour de 200µeV au moins deux fois plus que dans les boîtes à fluctuation d'interface (Gammon et al 2001). La différence d'énergie d'émission induite par l'anisotropie (δ_1) est faible mais non nulle (sauf pour QDP-feb2014), ce qui signifie que le potentiel de confinement dans les boîtes n'est pas strictement de symétrie trigonale, cette description restant tout de même une très bonne approximation. Nous pouvons noter que cette anisotropie est inférieure aux élargissements

 $^{^{9}\}delta_{0}$ et δ_{1} sont mesurés sur l'exciton neutre.

des raies (de l'ordre de 50-60µeV) mais supérieure à l'élargissement radiatif (de l'ordre de 1-3µeV) selon le temps de vie radiatif de la boîte (compris entre 200 et 600ps) (Kuroda et al 2007, Kuroda et al 2013).

Commençons à nous intéresser aux termes d'échange coulombien entre les électrons, nous nous aborderons ensuite ceux entre électrons et trous.

La faible valeur de δ_l permet l'émission de photon intriqué grâce à la cascade biexcitonexciton dans ces systèmes. C'est l'une des premières motivations à l'étude des boîtes quantique (111).

3.2.3.3.1 Echange coulombien entre les électrons

L'énergie d'échange coulombienne entre les électrons est normalisée en fonction du complexe étudié (voir section 3.2.3.3). Les résultats expérimentaux sont présentés dans le Tableau 2. La séparation en énergie est visible entre les flèches pour chaque complexe en Figure 32. Nous trouvons un échange Δ^{ee} de l'ordre de 4-6meV.

Dans l'hypothèse où les fonctions d'onde ne dépendent pas du nombre de charges présentes, les valeurs devraient être identiques. Or la dépendance n'est pas triviale, le confinement des fonctions d'onde étant lié aux effets coulombiens mais aussi à la distance entre les niveaux d'énergie électronique et la valeur du potentiel des barrières. Les effets du champ électrique sur les effets coulombiens sont traités plus loin (voir section 3.2.3.3.3).

La détermination de la valeur de Δ^{ee} (la plus précise) est réalisée pour X^{-*} / XX⁻ car les structures fines de ces deux complexes sont en miroir l'une de l'autre dans les spectres en champ magnétique donc aucun doute ne subsiste sur la position de la raie à faible intensité (singulet) et de plus la mesure est réalisée une fois pour chaque complexe.

3.2.3.3.2 Echange coulombien entre les électrons et les trous

La contribution des termes d'échange coulombien est déduite du nombre et de la nature des charges qui définissent la structure fine (voir section 3.2.3.3). Différentes valeurs de l'énergie d'échange peuvent être mesurées, les échanges entre un électron (trou) sur l'état p ou s avec un trou (électron) sur l'état s (voir Tableau 3). L'échange coulombien entre électrons et trous sont un ordre de grandeur au dessous de l'échange entre électrons pour les boîtes (001) (Warburton et al 1998, Urbaszek et al 2003) mais aussi dans les boîtes (111) (Dupertuis et al

2011). Nous pouvons remarquer que l'échange coulombien entre les électrons p et les trous s est plus fort que l'échange entre les trous p et les électrons s dans toutes les boîtes, les valeurs restant comparables. Le recouvrement entre les fonctions d'onde des électrons et des trous sur l'état fondamental étant meilleur, l'énergie d'échange entre les électrons s et les trous s est environ deux fois plus forte que l'énergie d'échange entre un état s et un état p.

	QDP-feb2014 QDN-sept2014		QDU-sep2014	QDQ-feb2014	QDF-nov2014	
Δ^{eh}_{ss}	160	260	300	280	240	
$\Delta^{\rm he}_{\rm ps}$	125	105	140	105	/	
$\Delta^{\rm eh}_{\rm ps}$	145	120	150	145	130	

Tableau 3 : Valeurs des clivages d'échange dus à l'interaction coulombienne entre les électrons et les trous à courte portée déterminée à partir des valeurs du Tableau 2 pour $X^0 X^{2+}$ et X^{2-} . Les valeurs sont en μ eV.

Si nous faisons l'hypothèse que les fonctions d'onde ne sont pas modifiées par le changement du nombre de charges dans la boîte et que les deux orbitales p sont identiques. Les différences d'énergie entre le doublet de X²⁻ et chaque raie du triplet de X³⁻ devraient être égales au moins pour QDP-fev2014 (boîte symétrique), or un facteur 2 sépare ces valeurs.

Pour pouvoir traiter les données, nous faisons l'hypothèse que les fonctions d'ondes des états s ne sont pas modifiées par l'ajout de charge. Ces états étant plus profonds, plus loin de la barrière de potentiel, ils sont donc a priori moins modifiés par l'ajout d'une charge. Avec cette hypothèse nous pouvons extraire les valeurs des clivages d'échange coulombien entre les états de conduction p et de valence s pour les différents complexes observés. Ces valeurs d'échanges sont extraites en mesurant les clivages en énergies des différents complexes en tenant compte de leur structure fine propre.



Figure 43 : Valeurs des clivages d'échange coulombien entre un électron p et un trou s pour les différents complexes négativement chargés pour les cinq boîtes quantiques étudiées précédemment. Les complexes sont ordonnés par terme d'échange croissant pour le complexe où l'échange a effectivement lieu.

En Figure 43, l'échange coulombien est représenté pour les quatre complexes négativement chargés par valeur croissante des clivages d'échange. Le clivage d'échange observé sur les transitions provient soit de l'état initial, c'est le cas notamment pour les complexes qui comportent un trou unique et des états orbitaux incomplets (X^{-*}, X²⁻, X³⁻ par exemple). Pour d'autres complexes le clivage provient au contraire de l'état final (XX²⁻, XX⁻).

Pour passer de X^{3-} à X^{2-*} ainsi que pour passer de X^{2-} à X^{-*} , on enlève un électron sur une orbitale *s*. Il y a donc une réduction de l'écrantage de l'interaction coulombienne électron-trou par les électrons¹⁰. Pour ce qui est du passage de X^{2-*} à X^{2-} , on déplace un électron d'une orbitale *p* à une orbitale *s*, diminuant le confinement de l'électron *p* mais augmentant le confinement du trou par l'électron *s*. Expérimentalement il semblerait que le recouvrement entre les fonctions d'onde du trou et de l'électron *p* augmente.

¹⁰ Les électrons ont aussi un rôle positif sur le confinement de la fonction d'onde des trous. Il semblerait expérimentalement que cet effet est plus faible que la réduction de l'écrantage sur l'efficacité de l'interaction coulombienne.

3.2.3.3 Evolution de l'amplitude des termes d'échange coulombien avec la tension appliquée

Jusque-là nous avons considéré que l'énergie d'échange coulombien ne dépendait pas du champ électrique appliqué, ni de son influence sur les fonctions d'onde. Ceci est vérifié pour l'énergie d'échange électron-trou dans la limite de notre précision mais l'énergie d'échange électron-électron augmente légèrement (environ 1%) avec la tension appliquée, i.e. augmente lorsque le champ électrique interne dans la structure diminue (voir Figure 44).



Figure 44 : Evolution des clivages d'échange coulombien électron-électron (rouge, axe de gauche) et électron-trou (noir, axe de droite) pour l'état initial X^{2-} en fonction de la tension appliquée.

L'échange coulombien électron-trou est donc approximativement constant (à notre précision près) par contre l'échange électron *s*-électron *p* augmente avec la tension appliquée. Nous en déduisons que le recouvrement entre les fonctions d'onde *s* et *p* augmente lorsque le champ électrique interne de la structure diminue.

3.2.3.4 Etats excités

Nous allons maintenant nous intéresser aux transitions qui se situent entre 15 et 40meV au dessus des transitions principales : tout d'abord en photoluminescence puis en spectroscopie d'excitation de photoluminescence.

3.2.3.4.1 Photoluminescence

Si nous regardons les boîtes avec un réseau à faible pouvoir dispersif, il y a toujours un grand nombre de raies spectrales de faible intensité à plus haute énergie (à plus basse énergie aussi mais ces transitions sont clairement liées à des transitions intra-boîtes provenant d'autres boîtes quantiques). Dans cette « forêt », il y a des transitions entre états excités (électron p, trou p), mais aussi d'autres boîtes quantiques désalignées situées à la périphérie de la zone de détection sur l'échantillon et des éventuelles transitions bandes à boîtes (Vasanelli et al 2002). Avec les échantillons à charge ajustable ces raies sont toujours présentes, voire plus importantes grâce à la stabilisation des électrons sur les états p avec la tension appliquée.

Par contre, les limites en tension des raies d'un groupe de transitions données émettant depuis la même boîte sont corrélées, les domaines en tension des plateaux d'existence sont identiques. Grâce à cela nous avons détecté les transitions électrons p-trou s qui sont d'une intensité d'un ordre de grandeur plus faible que leurs équivalentes (s-s) avec des charges sur les états sétudiées précédemment (voir Figure 45).

Pour l'instant, le seul indice qui relie les deux familles de transitions est constitué par la forte corrélation en tension entre les sauts d'états de charge, ceux-ci se produisant aux mêmes tensions. Ces transitions ont une énergie entre 15-40meV au-dessus des transitions fondamentales.



Figure 45 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDQ-feb2014 en fonction de la tension appliquée avec le réseau 1200 traits à l'ordre 1.

Intéressons nous maintenant à la structure fine des transitions excitées 25 meV au dessus des transitions fondamentales présentes dans le même domaine de tension. Les structures fines de ces transitions sont identiques en ce qui concerne le nombre de raies spectrales (voir Figure 46). « L'inversion » des forces d'oscillateur entre les transitions principales et excitées peut être la marque d'une transition impliquant des trous légers ou au moins une partie légère mélangée à un trou lourd renversant les forces d'oscillateur entre les transitions (voir section 1.3.1.2).



Figure 46 : Spectres des états fondamentaux (haut) et état excité correspondant (bas) pour QDQ-feb2014 et QDP-feb2014 pour les complexes X^{2-} et X^{3-} : où l'électron sur l'état *p* est stable.

3.2.3.4.2 Spectroscopie d'excitation de photoluminescence

Pour confirmer quelles transitions appartiennent effectivement à la même boîte, des études en spectroscopie d'excitation de photoluminescence (PLE) sont réalisées. Nous mesurons l'intensité de la luminescence de X^- en fonction de l'énergie du laser d'excitation. Ces études ont été menées sur la boîte QDU-oct2014.

Commençons par nous intéresser à la photoluminescence de QDU-oct2014, puis nous la comparerons aux résultats obtenus en PLE.

La photoluminescence de QDU-oct2014 est comparable à celle de QDP-feb2014 (voir Figure 47).



Figure 47 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-feb2014, les étiquettes indiquent les états de charge identifiés.

L'identification des complexes étudiés en émission entre l'excitation non-résonante et quasirésonante est effectuée grâce à la structure fine de l'émission ainsi qu'en comparant l'énergie d'émission du complexe. En effet comme vu en Figure 31, le domaine d'existence en tension d'un complexe dépend de la puissance d'excitation pour une excitation non résonante. Dans le cas d'une excitation intra boîte la plage d'existence en tension change drastiquement par rapport à une excitation dans la barrière. Nous ne pouvons donc pas utiliser directement la tension appliquée pour identifier les complexes lors du passage à une excitation intra-boîte. Nous allons illustrer cela par un exemple :

Premièrement l'énergie d'émission du complexe observé en PLE est de 1,7122eV pour une tension appliqué de 0,5V ce qui est compatible avec les énergies d'émission de X⁻ ou X²⁻. L'émission à champ nul n'ayant pas de structure fine, il s'agit donc de X⁻.L'exciton chargé X⁻ a une énergie d'émission de 1,722eV pour une tension appliquée de 0V pour une puissance d'excitation de 15 μ W. Il y a donc une différence de champ électrique interne dans la structure entre une excitation non résonante (P=15 μ W) et une excitation résonante (P=50 μ W) correspondant à une tension appliquée de 0,5V.



Figure 48 : Courbe rouge : intensité d'émission intégrée normalisée de X⁻ en fonction du désaccord d'énergie entre le laser d'excitation et X⁻ pour QDU-oct2014. En insert le spectre d'émission de X⁻ pour un désaccord de 34,7meV. La polarisation des trous photo-générés est d'environ 50%. La courbe verte représente un spectre typique de luminescence de X⁻.

Nous constatons un pic très intense d'émission du signal, lorsque le désaccord du laser d'excitation avec la raie détectée (X^-) est de 34,7meV, il y a donc probablement une absorption résonante à cette énergie. Nous pouvons aussi noter des pics secondaires à 22 et 42meV (voir Figure 48).

Nous pouvons maintenant comparer les désaccords en énergie du laser d'excitation par rapport à la luminescence avec les différences d'énergie entre les différentes transitions optiques d'une même boîte quantique pour différents complexes (voir Tableau 4).

X ³⁻		X ²⁻		X		X^0		\mathbf{X}^+	
PL	PLE	PL	PLE	PL	PLE	PL	PLE	PL	PLE
	34,1	32,9			22,7		28,6	/	34,9
35,5	35,5	35,7	35,5		34,1		30,4	/	35,2
37,1		40,0	39,4	37,7	38,1	32,0		/	41,5
	39,8	41,7	42,0		40,5	32,7		/	41,9
43,7	44,1	44,8	43,5		41,7	35,5		/	
46,6		46,2		42,8			36,4	/	
47,4		48,4		43,9		37,1		/	
50,9		49,7		45,2		40,6		/	
57,1		55,2		46,3		42,2		/	
59,0		57,8		49,0		44,9		/	
62,8		60,8		53,1				/	

Tableau 4 : Comparaison de la distance en énergie entre la transition principale et les transitions observées en photoluminescence à plus haute énergie et les résonances en PLE. Les transitions les plus intenses en photoluminescence sont indiquées en gras. Les énergies sont en meV.

Les transitions les plus intenses ne correspondent pas à des multiples du phonon optique d'AlGaAs, il y a donc probablement des phénomènes d'absorption résonante sur des transitions optiques entre états excités. Pour tous les complexes, le pic principal d'émission se situe entre 34 et 36meV et il est observé en photoluminescence pour les complexes négativement chargés. Il ne s'agit donc pas d'une absorption assistée par phonon mais d'une transition optique autorisée. Nous penchons pour une transition entre un électron p et un trou s. La luminescence des complexes chargés positivement est plus faible pour la transition principale et aucune transition n'est observée à plus haute énergie. Les transitions électron $p \rightarrow$ trou s nécessitent la présence d'un électron sur une orbitale p, cas extrêmement improbable pour des complexes chargés positivement.

3.2.3.4.3 Orientation de spin par pompage optique pour les électrons et pour les trous

L'orientation de spin d'électron ou de trou est possible sous excitation quasi-résonante pour les échantillons avec un dispositif de contrôle de charge, contrairement au cas de l'excitation dans la barrière dans ce type d'échantillon. Des valeurs de polarisation circulaire supérieures à 50% sont obtenues ici (voir Figure 49) où nous montrons les spectres en polarisation croisée (points) ou colinéaire (lignes) avec le laser pour différentes excitations.



Figure 49 : Spectre de photoluminescence en excitation quasi-résonante pour X^+ (gauche) et X^- (droite) pour QDU-oct2014. Les spectres en polarisation croisée sont représentés avec des points. Les spectres co-polarisés sont représentés par des lignes.

Pour obtenir de l'orientation de spin par pompage optique puis l'orientation de spin des noyaux par interaction hyperfine (que nous mesurons grâce au décalage Overhauser (OHS)), la polarisation induite par l'excitation à travers ces différentes résonances a été étudiée pour l'orientation de spin de l'électron (à travers X^+) et l'orientation de spin du trou (à travers X^-). Nous pouvons ici faire varier plusieurs paramètres pour modifier l'efficacité du pompage optique :

• La puissance du laser d'excitation.

• L'énergie d'excitation : la résonance utilisée, le type d'excitation utilisé mais aussi le désaccord en énergie avec la transition optique pompée.

• Le champ électrique interne de la structure en appliquant une tension externe.

Ces trois paramètres ne sont pas complètement indépendants, en effet l'augmentation de puissance augmente légèrement le champ électrique interne, modifiant donc le désaccord entre le laser et la transition pompée par exemple. Les couplages entre les différents paramètres expérimentaux seront développés dans l'analyse de l'effet de chaque paramètre dans les sections suivantes.

3.2.3.4.3.1 Puissance d'excitation

Les études en puissance ont été réalisées sur X⁻ dans un régime de forte puissance (voir Figure 50), nous ne voyons pas le régime où la polarisation dépend de la puissance d'excitation. Ceci est dû à la polarisation importante de l'émission de la lumière, l'émission cross-polarisée avec le laser a une intensité environ six fois plus faible que l'émission co-polarisée ce qui limite la plage de puissance où nous pouvons l'observer.



Figure 50 : Polarisation des trous mesurée à partir de la polarisation circulaire de la lumière émise (gauche) et décalage Overhauser (droite) en fonction de la puissance d'excitation du laser réglé sur la résonance à 1,754eV à 0,51V pour X⁻ pour QDU-oct2014.

Lors de la variation de puissance, le champ électrique induit par les charges photo-générées change, un décalage des longueurs d'onde d'émission (voir Figure 51) de l'ordre de 30µeV est observé entre 1 et 100µW de puissance d'excitation¹¹. Ceci est bien plus important que la largeur spectrale du laser d'excitation mais faible comparé à la largeur d'une résonance voir

¹¹ Il faut aussi prendre en compte le décalage en énergie éventuelle de l'état final du processus d'absorption. Sans identification formelle, ce décalage reste impossible à évaluer.

Figure 48 (au moins 200 μ eV de largeur à mi-hauteur) mais nous verrons par la suite que le désaccord entre le laser et le centre de la résonance joue un rôle crucial sur l'orientation des spins électroniques et nucléaires. En changeant le désaccord, nous modifions, comme avec la puissance, le taux de génération de porteur et donc les différents temps de corrélation.



Figure 51 : Energie d'émission de X⁻ en fonction de la puissance d'excitation du laser réglé sur la résonance à 1,754eV à 0,51V pour QDU-oct2014.

L'optimisation de l'intensité émise ou de la polarisation électronique et nucléaire doit donc être réalisée à une puissance constante pour simplifier les études. Ceci ne sera pas possible lors d'études magnéto-spectroscopiques où le taux de génération dépend du champ magnétique.

3.2.3.4.3.2 Résonance d'absorption utilisée pour l'orientation de spin

Toutes les résonances principales (en terme d'intensité) en émission pour X⁻ permettent la génération d'une orientation de spin des trous mais aussi des noyaux. Seule change l'efficacité de cette génération, efficacité pouvant varier d'un facteur deux pour différentes résonances (voir Figure 52).



Figure 52 : Plage des valeurs de polarisation circulaire (gauche) et de décalage Overhauser (droit) pour différentes énergies d'excitation du laser en variant la tension appliquée de 0,5Và 0,6V pour QDF-dec2014.

Le changement le plus important de la génération d'orientation de spin électronique et nucléaire est obtenu en variant la tension appliquée finement pour modifier le désaccord entre la transition pompée et le laser d'excitation et ainsi le taux de génération des charges (voir Figure 53).



Figure 53 : Polarisation circulaire (noir) et décalage Overhauser de QDF-dec2014 (bleu) pour X⁻, le maximum d'intensité de luminescence est obtenu pour V=0,63V (flèche rouge) (gauche) et pour X⁺, le maximum d'intensité de luminescence est obtenu pour V=0,07V (flèche rouge) (droite). La différence d'énergie d'émission entre les deux extrema est de 40 μ eV pour X⁻ et de 350 μ eV pour X⁺.

Il est important de noter que le maximum d'orientation de spin électronique et nucléaire n'a pas lieu pour la tension où l'intensité d'émission est la plus grande, effet dont il faudra tenir

compte dans l'analyse des expériences d'orientation de spin obtenues en se plaçant au maximum de l'intensité d'émission. Cela remet partiellement en question les résultats d'orientation de spin obtenus en se plaçant à l'intensité maximale.

3.2.3.4.3.3 Champ électrique interne

Les études de l'influence du champ électrique interne de la structure ont été réalisées sur X⁻, complexe qui existe sur une plage de tension importante. Les mesures ont été faites pour la même résonance autour de 1,754 eV. Pour chaque tension l'énergie du laser est ré-optimisée de façon à obtenir une intensité de photoluminescence maximale à puissance égale (voir Figure 54).



Figure 54 : Polarisation circulaire de la lumière émise (gauche) et décalage Overhauser (droite) en fonction de la tension appliquée pour la résonance à environ 1,754eV pour X⁻ pour QDU-OCT2014. L'énergie du laser est optimisée pour chaque tension pour avoir l'intensité de photoluminescence maximale.

3.2.3.4.3.4 Résumé

L'excitation quasi-résonante, par le couplage qu'elle induit entre la tension appliquée, le désaccord du laser avec la transition pompée et la puissance d'excitation, rend très délicate l'étude de l'orientation de spin en fonction de ces paramètres. Il nous faut idéalement travailler à une tension constante avec un désaccord en énergie constant entre le laser et la

transition en maintenant une puissance d'excitation constante. Nous garderons cela en tête pour les études plus poussées sur les effets nucléaires.

Les transitions p-s seront étudiées en fonction du champ magnétique appliqué au Chapitre 4. Elles joueront un rôle important pour l'étude de la physique du spin des porteurs photogénérés par pompage optique en lumière polarisée circulairement dans les boîtes quantiques, étant souvent le seul moyen efficace d'orienter le spin dans les échantillons à charge ajustables. Lors de ces études, il sera donc primordial d'utiliser une résonance qui génère des polarisations électroniques et nucléaires élevées, mais aussi de se placer dans la gamme optimale de champ électrique interne de la structure. Cette procédure sera explicitée au chapitre 5.

Le contrôle de l'état de charge dans la structure nous permet d'envisager l'identification formelle des complexes observés dans ce chapitre grâce aux études magnéto-spectroscopiques. L'excitation intra-boîte simplifie l'étude des complexes excitoniques, car on excite en général un très petit nombre de boîtes (voire une boîte unique) dans ces conditions d'excitation. Ceci sera utilisé pour l'étude de l'interaction hyperfine pour les électrons et les trous.

4 Chapitre 4 : Magnéto-spectroscopie des complexes chargés

La séparation des complexes obtenus dans le chapitre 3 permet de simplifier l'étude magnétospectroscopique pour assuser une identification plus fiable des complexes. En effet, un des points les plus sensibles de cette étude est de pouvoir séparer le complexe étudié des raies parasites qui peuvent présenter des coefficients diamagnétiques ou Zeeman très différents, ou des raies des autres complexes. Une illustration de cette difficulté est donnée en Figure 55 qui présente une étude magnéto-optique réalisée sur un échantillon dépourvu d'un dispositif de contrôle de la charge (Sallen et al 2011), où certaines raies se croisent en champ magnétique sans qu'il soit possible de dire si elles viennent du même complexe.

La plupart des études magnéto-optiques des complexes chargés réalisées grâce aux échantillons à charge ajustable ont été jusqu'à présent réalisées sur des boîtes (001) ayant une symétrie C_{2v} . Seuls les complexes peu chargés comme les excitons, bi-excitons et les trions ont été étudiés pour des boîtes d'orientation cristalline (111) (Sallen et al 2011, Oberli 2012, Durnev et al 2013).

Les systèmes étudiés au chapitre 3 permettront de réaliser la magnéto-spectroscopie de complexes chargés allant de X^{2+} à X^{4-} sur des boîtes ayant une symétrie C_{3v} et donc une signature magnéto-optique riche, en particulier pour les complexes chargés positivement. De plus un modèle complet de l'évolution de l'énergie des trions chauds (X^{+*} et X^{-*}) en fonction du champ magnétique sera présenté (Durnev et al 2016). Les premiers résultats magnéto-optiques sur les recombinaisons électron *p* trou *s* seront aussi présentés. Après un rappel de la méthode de détermination expérimentale des facteurs de Landé en utilisant les trions et l'exciton, nous étudierons séparement differents complexes excitoniques.



Figure 55 : Etude en champ magnétique longitudinal d'une boîte quantique (111) sans contrôle de charge réalisée sur QDF-juillet2011. Seul X^0 , X^+ et XX^0 , et des transitions non identifiées sont observables. Les chiffres 1et 2 indiquent deux boîtes quantiques différentes.

4.1 Magnéto-spectroscopie en champ longitudinal des boîtes (111) ayant une symétrie C_{3v}

Les boîtes (111) ont un comportement magnéto-spectroscopique différent des boîtes (001) sous champ longitudinal appliqué parallèlement à la direction [111].

En effet comme vu (section 1.5.2.2), les trous ont un facteur de Landé (facteur g), l'interaction des trous avec le champ magnétique longitudinal a un caractère tensoriel. Dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$, le tenseur gyromagnétique s'écrit :

$$g_{h} = \begin{pmatrix} g_{h1} & g_{h2} \\ g_{h2} & -g_{h1} \end{pmatrix}$$

$$\tag{47}$$

$$g_{\rm h} = \sqrt{g_{\rm h1}^2 + g_{\rm h2}^2} \tag{48}$$

En champ magnétique longitudinal, les termes non diagonaux (g_{h2}) couplent les trous de spin $\left|\frac{3}{2}\right\rangle$ et $\left|-\frac{3}{2}\right\rangle$. Cette propriété permet d'observer les états « noirs » de l'exciton (voir Figure 58). En effet si g_{h2} diffère de zéro, les états excitoniques décrits à champ nul par les paires

 $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle\left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ acquerront du fait du couplage entre états de trous une force d'oscillateur non nulle, leur force d'oscillateur s'annule. Concernant la dénomination de ces états « noirs »,

l'intensité relative et la position spectrale des états « noirs » et « brillants » dépend de l'amplitude et du signe du terme diagonal g_{hl} .

Nous nous plaçons dans le cas où $g_{h2} \neq 0$. Nous observons donc quatre transitions pour le trion. Les positions relatives des transitions les plus brillantes dépendent alors du signe de g_eB_z et de $g_{h1}B_z$. Il existe donc quatre configurations possibles (voir Figure 56).

Dans le cas où g_e et B_z sont positifs (panneaux du haut Figure 56), si g_{h1} est positif, les transitions intérieures sont les plus brillantes (voir Figure 58) alors que si g_{h1} est négatif (le cas dans une majorité de boîtes émettant autour de1.72eV) les transitions extérieures sont les plus brillantes (Durnev 2014). Nous nommerons conventionnellement les transitions « brillantes » (« noires ») les transitions les plus (moins) intenses. Selon le signe de g_{h1} , l'état décrit par cette dénomination est donc différent (voir Figure 56).



Figure 56 : Position des quatre transitions d'un trion (X⁺ ou X⁻) en fonction de la valeur de g_{hl} .

En ce qui concerne les expériences sous champ magnétique transverse, la symétrie du système ne permet pas de couplage entre les états de trou $(g_h^{\perp} = 0)$ mais elle autorise le couplage entre les états d'électron $\left|\frac{1}{2}\right\rangle$ et $\left|-\frac{1}{2}\right\rangle$.

Toutes les mesures présentées dans ce chapitre sont effectuées en appliquant un champ magnétique longitudinal parallèle à l'axe [111].

Les rampes de champ magnétique sont réalisées en détectant les deux polarisations et en effectuant la rampe uniquement pour un champ magnétique positif. Ceci est équivalent à réaliser la rampe en détectant une seule polarisation et en effectuent la rampe pour les champs négatifs et positifs (comme nous nous en assurons aisément en utilisant la symétrie par renversement du temps du système global). Pour plus de lisibilité, les expériences seront présentées de la seconde façon (voir Figure 57).



Figure 57 : Cartographie de l'intensité d'émission pour une rampe de champ magnétique positive et une détection σ^+ , σ^- et sa représentation en champ magnétique positif et négatif avec une détection effective σ^+ pour plus de lisibilité.

Avant d'étudier plus précisément les complexes fortement chargés, nous allons expliciter la méthode permettant la mesure des facteurs de Landé longitudinaux (facteurs *g* longitudinaux).

4.1.1 Détermination des tenseurs de Landé en champ magnétique longitudinal

4.1.1.1 Mesures de la position des raies de X⁻

La détermination des facteurs g commence par la mesure de la position des raies en excitation linéaire¹² avec une détection en base circulaire lors d'une rampe en champ magnétique longitudinal. La présence des quatre raies permet la détermination simultanée de g_e et g_h (Sallen et al 2011, Durnev et al 2013) voir Figure 58 en extrayant les différences d'énergie entre les raies de la Figure 58 :

- (2)-(1) et (4)-(3) : $g_e \mu_B B_z$
- (3)-(1) et (4)-(2) : $g_h \mu_B B_z$



Figure 58 : (à gauche) Cartographie d'intensité d'émission de X⁻ en fonction du champ magnétique appliqué longitudinalement pour QDX-nov2013. (au milieu) Spectre d'intensité de X⁻ avec deux raies par polarisation. Les flèches bleues indiquent les différences d'énergie mesurées pour extraire g_e et g_h . (à droite) schéma de transition du trion X⁻ ($g_{h1} > 0$).

Nous obtenons alors quatre droites qui se superposent deux à deux (voir Figure 59) et permettent d'extraire les valeurs des facteurs g à un signe global près.

¹² Pour s'assurer de l'absence d'effet nucléaire


Figure 59 : Différence d'énergie entre les quatre raies de X⁻ permettant d'extraire les valeurs des facteurs g pour ce complexe pour QDX-Nov2013.

Comme vu en section 1.5.3.2, il existe par ailleurs en principe des termes diamagnétiques ($\alpha_i B_z^2$ (i=1,2)) qui couplent les états de trous ¹³ (Oberli 2012). Dans toute la suite de ce manuscrit, les termes diamagnétiques seront traités de façon empirique au moyen d'un seul coefficient α et nous négligeront les couplages entre trous qu'il pourrait induire. La Figure 59 montrant bien que l'approximation d'une évolution linéaire en champ est très bonne, les différences d'énergie entre les transitions étant des droites.

4.1.1.2 Mesure de la position des raies de X⁰

Pour extraire les deux valeurs g_{h1} et g_{h2} , nous aurions pu utiliser les ratios d'intensité entre les raies noires et brillantes de X⁺ mais les mesures d'intensité ne sont pas les plus précises¹⁴. De plus le ratio d'intensité a tendance à changer en fonction du champ magnétique. Le couplage entre les états de trous par les termes diamagnétiques a une influence plus importante sur les

¹³ Voir équation (18). La représentation Γ_1 apparaît deux fois dans cette expression, et B_z^2 appartient à cette même représentation. En revenant à la base standard, nous obtenons donc bien un terme de couplage entre les états de trou.

¹⁴ Lorsque le champ magnétique atteint des valeurs élevés (B>4T), l'alignement optique dans l'insert se dégrade, ce qui rend difficile l'analyse de l'intensité des transitions sous champ magnétique variable.

intensités et di-symétrise les transitions pour des champs positifs ou négatifs (Oberli 2012 et section 1.5.3.2).

Nous utilisons donc une autre méthode basée sur la modélisation (voir section 1.5.3.2) de la différence d'énergie entre les états brillants et noirs de l'exciton (voir Figure 60).



Figure 60 : Ecart d'énergie pour X⁰ entre les états brillants (gauche) et noirs (droite). Les points rouges représentent les données expérimentales. La ligne noire est donnée par la modélisation des différences d'énergie entre les états brillants et noirs avec les valeurs $g_{h1}^s = -0.23$, $g_e^s = 0.27$, $g_{h2}^s = 0.69 \Delta^0 = 250$.

La détermination d'une énergie d'émission d'une transition est en effet toujours plus précise que la détermination de son intensité. Cette méthode nécessite d'utiliser les valeurs de g_e et g_h extraites précédemment. Nous utiliserons toujours les valeurs extraites de X⁺ pour avoir un jeu de résultats cohérents. En effet, la valeur de g_h dépend quelque par de l'état de charge de la boîte (voir section 4.1.1.3).

Les mêmes études pourraient être réalisées sur le biexciton avec sa structure magnéto-optique inversée mais nous ne l'avons pas observé dans les études réalisées sur les échantillons à charge ajustable ayant une barrière tunnel de 20nm.

4.1.1.3 Evolution de g_h avec l'état de charge

Pour déterminer les variations de g_e et g_h en fonction de l'état de charge nous mesurons les valeurs des facteurs g pour X⁻ et X⁺ (voir section 4.1.1.1). Pour certaines boîtes où la valeur de g_{h1} est proche de zéro, le signe de g_{h1} change entre X⁺ et X⁻ ce qui transforme les états les plus brillants en états les moins brillants (voir Figure 61), il y a un renversement des forces

d'oscillateurs entre les transitions noires et brillantes de ces deux complexes. Pour avoir une estimation des valeurs de g_{hl} , nous sommes obligés ici d'utiliser le rapport d'intensité (à champ magnétique fixe) entre les transitions brillantes et noires pour X⁺ et X⁻. La précision de détermination est donc plus faible que par la modélisation de l'énergie de l'exciton.



Figure 61 : Intensité de photoluminescence pour X⁻ (haut) et X⁺ (bas) pour une détection circulaire σ^+ (rouge) et σ^- (noir) sous excitation σ^+ à 8,8T pour QDX-Nov2013. Les transitions les plus intenses sont au centre pour X⁻ et à l'extérieur pour X⁺.

Les tendances de l'évolution des facteurs g lors du passage de X⁻ à X⁺se dégagent néanmoins à la lecture du Tableau 5 et du Tableau 6, nous constatons :

• Pour les électrons, une relative stabilité (à 5% près) de la valeur de g_e pour X⁻ et X⁺.

• Par contre pour les trous, une augmentation de la valeur de g_h (20%) corrélée avec une diminution de la valeur de g_{h1} de l'ordre de 30% (et ainsi qu'une augmentation de g_{h2} dans de nombreux cas).

	X ⁰	X	Χ+	
	g _e			
QDC-Nov2013	0,46	0.46	0,46	
QDF-Nov2013	0,4644	0.47	0,46	
QDR-Nov2013	0,42	0.46	0,48	
QDX-Nov2013	0,44	0,43	0.48	
QDK-Nov2013	0,448		0,45	
QDS-Nov2013	0,38	0,38		
QDF-Déc2014	0,32	0,32	0,31	
QDP-Feb2014	0,32	0,32	0,28	
QDQ-Feb2014	0,33	0,33	0,32	

Tableau 5 : Valeur de g_e pour différentes boîtes pour X⁰, X⁻ et X⁺.

	X ⁰			X ⁻		Χ+			
	g h	g h1	g _{h2}	g h	g h1	g _{h2}	g h	g h1	g _{h2}
QDC-Nov2013	0,92	-0,04	0,92	0,76	-0,18	0,74	0,92	0,25	0,89
QDF-Nov2013	0,99	0,17	0,98	0,79	0,03	0,79	0,99	0,37	0,92
QDX-Nov2013	0,80	0,08	0,79	0,80	-0,10	0,79	0,97	0,25	0,94
QDR-Nov2013	0,91	0,30	0,86	0,84	0,16	0,82	1,07	0,33	1,02
QDK-Nov2013	0,76	0,39	0,66	/	/	/	0,84	-0,06	0,84
QDS-Nov2013	0,83	0,35	0,75	0,83	-0,06	0,83	/	/	/
QDF-Dec2014	0,98	0,70	0,68	0,98	0,47	0,86	0,96	0,32	0,91
QDP-Feb2014	0,92	0,75	0,54	0,91	0,42	0,80	1,31	0,82	1,02
QDQ-Feb2014	0.88	0.56	0.68	0.91	0.36	0.84	0.90	0.38	0.82

Tableau 6 : Valeur de g_h , g_{h1} et $/g_{h2}/$ pour différentes boîtes pour X⁰, X⁻ et X⁺, pour les trions les valeurs de g_{h1} et g_{h2} sont déduites des ratios d'intensité entre les états brillants et noirs.

Ces variations non négligeables des valeurs des facteurs g_h compliquent le choix des paramètres pour la modélisation de complexes fortement chargés : nous extrairons les valeurs à partir de X⁺ ou X⁻ et nous les utiliserons pour X^{+*}, X²⁺ par exemple. Nous ne pouvons donc pas fixer plus précisément les valeurs de g_h , g_{h1} et g_{h2} pour les trions chauds X^{+*} avec les valeurs mesurées sur le trion X⁺ ou X⁻. Nous choisirons comme paramètres de départ de la modélisation, les valeurs extraites du complexe avec l'état de charge le plus proche de celui étudié.

4.1.2 Variation des valeurs des facteurs g avec l'énergie d'émission des boîtes

Nous avons mesuré les facteurs g dans un nombre suffisant de boîtes (en incluant toutes les expériences réalisées dans l'équipe sur les boîtes (111)) pour pouvoir obtenir une statistique sur les valeurs de facteur g en fonction de la longueur d'onde d'émission des boîtes (voir Figure 62). La longueur d'onde d'émission des boîtes est directement liée à leur taille et donc aux conditions de croissance.



Figure 62 : Valeurs de g_e^s (haut) et g_h^s (bas) pour X⁺ en fonction de l'énergie d'émission de X⁰ pour différentes boîtes. Les carrés noirs représentent les mesures réalisées dans ce manuscrit, les carrés bleus sont extraits de Kunz 2013 et Durnev et al 2012.

4.1.2.1 Evolution de g_h

Nous avons comme expression pour g_{h1} et g_{h2} extraite de Durnev et al 2012 :

$$g_{h1} = g_{h1}^0 + c_1 \frac{L^2}{a^2}$$
(49)

$$g_{h2} = c_2 \beta \frac{L}{a} \tag{50}$$

Avec *L*, la taille de la boîte suivant l'axe de croissance, *a*, la taille de la boîte dans le plan, β caractérise le caractère trigonal de la boîte, g_{h1}^0 , la valeur de g_{h1} pour L=0; et c_1 et c_2 sont deux coefficients dépendants de la boîte. Nous avons donc g_h égal à :

$$g_{h} = \sqrt{g_{h1}^{0}{}^{2} + \frac{L^{2}}{a^{2}}(2g_{h1}^{0}c_{1} + c_{2}{}^{2}\beta^{2}) + c_{1}{}^{2}\frac{L^{4}}{a^{4}}}$$
(51)

 c_1 , c_2 et β sont des paramètres qui dépendent des boîtes, au vu des résultats expérimentaux, il n'y a pas de tendance dans l'évolution conjointe de ces paramètres en fonction de la longueur d'onde d'émission ou de la taille de la boîte.

Les valeurs g_h , g_{h1} et g_{h2} peuvent être « choisies » dans une gamme assez large (un facteur 2) en testant des boîtes indépendamment de leur longueur d'onde d'émission. Il n'y a pas de corrélation directe entre la longueur d'onde d'émission et les valeurs de g_h . Certaines constantes semblent demeurer toutefois, avec des valeurs de $g_{h2} > g_{h1}$ dans une majorité de boîtes.

4.1.2.2 Evolution de g_e

L'augmentation de la taille de la boîte et donc la diminution de l'énergie d'émission est le principal facteur influençant l'évolution du facteur g de l'électron. Contrairement au facteur g du trou, il est assez peu sensible au facteur de forme de la boîte (Pryor et al 2006).

Le facteur g de l'électron augmente donc avec l'augmentation du confinement dans la boîte et i.e. avec la diminution de la taille de la boîte (Kotlyar et al 2001).

La valeur du facteur de Landé de l'électron a un signe différent entre GaAs (g_e =-0,44) et AlGaAs (g_e =0,5). Nous nous attendons donc à des valeurs de g_e comprises entre -0,44< g_e <0,5. Dans la plage d'énergie d'émission étudiée, l'évolution de g_e en fonction de l'énergie d'émission de X⁰ est globalement linéaire :

$$g_e \approx -3 + 1.9 * E^{X^0} (eV)$$
⁽⁵²⁾

pour $E(X^0)$ compris entre 1,7 et 1,8eV. Notons que dans cette plage $g_e^s > 0,1$.

Les valeurs de g_e dépendent directement de la longueur d'onde d'émission. Par rapport aux études précédentes les valeurs de g_e des boîtes étudiées sont environ deux fois plus faibles car nous étudions des boîtes plus grosses émettant à plus faible énergie.

4.1.3 Magnéto-spectroscopie des complexes chargés

La magnéto-spectroscopie est d'une grande aide pour l'identification des complexes. Chaque complexe a une signature magnéto-spectroscopique particulière. Ceci permet donc avant même l'identification de voir quels complexes sont toujours présents et quels autres sont plus « exotiques ». Nous nous concentrerons sur les complexes qui sont présents dans la majorité des boîtes, dont l'évolution des transitions est récurrente et reproductible dans les études en champ magnétique.

4.1.3.1 Signature magnéto-spectroscopique des complexes

Dans plusieurs boîtes nous avons des états de charge allant de X^{2+} à X^{4-} . Pour identifier les complexes, nous nous appuyons sur des comportements typiques de certains états de charge déjà bien identifiés et étudiés précédemment :

• X^0 n'a qu'une transition dégénérée à champ nul. Lorsque le champ magnétique augmente, l'évolution de la position spectrale de la transition est parabolique avec des états noirs apparaissant à plus basse énergie lorsque le champ magnétique augmente.

• XX^0 devrait être le miroir de X^0 avec l'apparition des états noirs à plus haute énergie avec l'augmentation du champ magnétique. Nous ne l'avons toutefois pas observé ici.

• X⁺ et X⁻ ont été étudiés et identifiés dans des études précédentes : une transition qui évolue selon deux paraboles non dégénérées (Sallen et al 2012)

• X^{3-} dont l'hybridation des électrons sur les états *p* avec un continuum lui donne un comportement en champ magnétique très particulier proche de celui observé par (Karrai et al 2004, Van Hattem et al 2013) pour des boîtes InGaAs orienté selon l'axe [001].

En plus de ces points de référence, nous savons que lorsque la tension de polarisation de la diode augmente, le nombre d'électrons résidents augmente (voir section 3.2.3). Pour confirmer cela, des modélisations ont été élaborées sur certains complexes (Durnev et al 2016). Ces modélisations permettent aussi l'extraction des tenseurs de Landé des particules sur les orbitales p.

Nous allons d'abord présenter les résultats expérimentaux puis les comparer avec les modèles développés.

4.1.3.2 Aperçu général

La boîte étudiée est QDP-feb2014 : commençons par rappeler son comportement en champ électrique (voir Figure 32) sur lequel nous avons figuré les tensions auxquelles des rampes de champ magnétique ont été réalisées (voir Figure 63). Ces tensions sont choisies loin des extrémités des domaines de stabilité des complexes.



Figure 63 : Cartographie d'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014, les étiquettes indiquent les états de charge identifiés. Les traits blancs indiquent les tensions auxquelles les rampes de champ magnétique ont été réalisées.

Nous allons commencer par présenter la cartographie d'intensité d'émission en fonction du champ magnétique appliqué pour toutes les transitions observées puis nous nous focaliserons sur les transitions identifiées qui nous intéressent plus particulièrement.



Figure 64 : Cartographie d'intensité d'émission avec une excitation et une détection σ^+ pour différentes tensions appliquées pour QDP-Feb2014. Les complexes observés vont de X^{2+} (haut gauche) à X^{4-} (bas droite).

De manière générale, nous avons noté que les comportements en champ magnétique sont très différents en fonction du complexe ce qui permet leur identification. Les complexes fortement chargés positivement ont un grand nombre de raies engendrées par le mélange entre les trous de spin opposés pour les états s mais aussi pour les états p.

Nous nous intéressons ici seulement aux transitions ayant une intensité non négligeable (intensité supérieure à 5-10% de l'intensité de la transition principale).

4.1.3.3 Résultats expérimentaux

Pour trouver le nombre de raies par complexe, nous cherchons d'abord le nombre de raies autorisées à champ magnétique nul. Dans ce cas là, les règles de sélections sont les mêmes que pour une boîte (001) en négligeant le couplage avec les trous légers (ce dernier couplage sera négligé dans toutes les études sur les transitions les plus intenses entre électron s et trou s).

La richesse des spectres magnéto-spectroscopiques des boîtes possédant une symétrie C_{3v} vient du couplage entre les trous lourds de spins opposés. En effet, ce dernier induit des couplages entre les différents états triplets des trous par l'application d'un champ magnétique longitudinal.

Nous allons présenter chaque complexe, en commençant par les résultats expérimentaux de magnéto-optique. Nous nous intéresserons ensuite aux nombres de transitions attendues pour $B_z=0$ et $B_z\neq 0$. Pour certains complexes, nous avons modélisé l'évolution de la position en énergie des transitions en fonction du champ magnétique appliqué B_z pour extraire les tenseurs g pour les orbitales p. Ce travail a été réalisé en collaboration avec M.V. Durnev, M.M. Glazov et E.L. Ivchenko du Ioffe Institute à S^t Petersburg.

Les hypothèses sur la nature du complexe viennent de leur étude en tension ainsi que de leur structure fine à champ nul (voir Chapitre 3).

Pour tous les complexes, nous ne nous intéressons qu'aux transitions depuis ou vers l'état triplet. Nous négligerons donc l'état singulet pour deux particules sur ses orbitales différentes (s et p) (voir section 1.4).

Concernant la dénomination des états, ceux-ci seront nommés en fonction de la projection de leur moment orbital suivant l'axe z à champ nul. Ils seront aussi représentés par leur état à fort champ magnétique (lorsqu'on peut négliger l'Hamiltonien d'échange coulombien par rapport à l'Hamiltonien magnétique). Pour cette représentation, nous indiquons l'orbitale de chaque

particule en indice. Les particules formant des états singulets ou des états triplets seront notées entre parenthèses avec en indice *S* ou *T* pour singulet ou triplet. Pour rappel, $(\uparrow_s \downarrow_s)_S$ est un singulet d'électron sur les orbitales *s*. L'état de trou à fort champ magnétique est représenté en terme de pseudo-spin ($\tilde{\uparrow}$ ou $\tilde{\downarrow}$)

4.1.3.3.1 Trion chaud X^{-*}

Cet état excité de X⁻ apparaît dans le même domaine de tension appliquée que le trion négativement chargé (X⁻) mais il présente une structure fine en doublet à champ nul, nous postulons donc qu'il s'agit de X^{-*} (Sanada et al 2009). Ce qui sera ensuite confirmé par la modélisation.

L'état initial de X^{-*} contient deux électrons (*s* et *p*) et un trou *s*. En négligeant l'état singulet, nous avons donc trois états initiaux séparés en énergie par l'échange (trou)-(électron *s* + électron *p*) : $\widetilde{\Delta}_{0}^{X^{-*}} = \frac{1}{2} \left(\Delta_{ps}^{eh} + \Delta_{ss}^{eh} \right)$ (Cortez et al 2002). L'état final est un électron *p* seul.



Figure 65 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{**} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\hat{\Pi}$ $(\tilde{\downarrow})$ indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont repérés à champ nul par la projection de leur moment angulaire total.

Nous allons commencer par présenter l'Hamiltonien Zeeman pour deux électrons. L'Hamiltonien Zeeman d'un électron s ou p est un tenseur diagonal dans la base

$$\left\{ \left| \frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \right\} :$$

$$H_{z,e}^{s(p)} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{e}^{s(p)} & 0\\ 0 & -g_{e}^{s(p)} \end{pmatrix}$$
(53)

Nous obtenons donc la matrice pour deux électrons avec un électron sur l'état s et un sur l'état

$$p \text{ dans la base } \left\{ \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{s} , \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{p} , \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{p} , \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{p} \right\} :$$

$$H_{z,e} = \frac{\mu_{B} B_{z}}{2} \begin{pmatrix} g_{e}^{s} + g_{e}^{p} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & g_{e}^{s} - g_{e}^{p} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -(g_{e}^{s} - g_{e}^{p}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -(g_{e}^{s} + g_{e}^{p}) \end{pmatrix}$$
(54)

Ce qui nous amène après changement de base dans la base des triplets et singulets de spin,

$$\begin{cases} \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left|\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{p} + \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{p}\right), \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left|\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{p} - \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{s} \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{p}\right) \right\} \dot{a}: \\ H_{z,e} = \frac{\mu_{B}B_{z}}{2} \begin{pmatrix} g_{e}^{s} + g_{e}^{p} & 0 & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0 & (g_{e}^{s} + g_{e}^{p}) \\ 0 & 0 & -(g_{e}^{s} + g_{e}^{p}) & 0\\ 0 & (g_{e}^{s} - g_{e}^{p}) & 0 & g_{e}^{s} - g_{e}^{p} \end{pmatrix}$$
(55)

Nous pouvons séparer les états antisymétriques en spin et les états symétriques en spin par permutation des deux particules. Les états antisymétriques en spin sont à des énergies très différentes (séparés typiquement de 5meV) des états symétriques du fait de l'échange coulombien entre électrons s et p (voir section 1.4). Nous pouvons donc négliger les couplages Zeeman entre triplet T₀ et singulet S₀ devant le clivage d'échange, et travailler dans sous-espace seulement. Ceci le des triplets nous amène dans la base $\left\{ \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{p} + \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{1}{2} \right\rangle^{p} \right), \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle^{p} \right\}$ que nous noterons par la

suite $\{|T_1\rangle, |T_0\rangle, |T_{-1}\rangle\}$, à l'Hamiltonien :

$$\widetilde{H}_{z,e} = \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} g_e^s + g_e^p & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0\\ 0 & 0 & -(g_e^s + g_e^p) \end{pmatrix}$$
(56)

$$\widetilde{H}_{z,e} = (g_e^s + g_e^p)\mu_B B_z \hat{I}_z^e$$

A partir de ces considérations et des règles de sélection optique, nous pouvons déterminer le nombre de raies de X^* à fort champ et les comparer aux spectres obtenus.

Ajoutons maintenant l'échange coulombien pour avoir l'évolution globale de X^{-*} en fonction du champ magnétique dans toute la gamme de champ explorée :

En utilisant l'équation (47) pour les trous, l'équation (56) pour les électrons, et l'échange coulombien entre les électrons s et p et un trou s, nous obtenons alors un Hamiltonien effectif :

$$\mathcal{H}^{\mathcal{X}^{-*}} = -\widetilde{\Delta}_{0}\sigma_{z}^{h}\widehat{I}_{z}^{e} + \frac{1}{2}\left(g_{e}^{s} + g_{e}^{p}\right)\widehat{I}_{z}^{e}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2}g_{h1}^{s}\sigma_{z}^{h}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2}g_{h2}^{s}\sigma_{x}^{h}\mu_{B}B_{z}$$
(57)

Le premier terme décrit l'échange coulombien $\tilde{\Delta}_0 = \Delta_0^{ps} + \Delta_0^{ss}$. Le deuxième terme décrit la dérive en champ magnétique liée aux électrons sur les orbitales *s* et *p*. Le troisième terme décrit la dérive en champ magnétique du trou pour le terme diagonal du tenseur du facteur *g* des trous. Le dernier terme décrit la dérive du terme non diagonal de ce tenseur.

Nous avons négligé dans cette modélisation les termes diamagnétiques qui seront ajoutés dans chaque modèle, avec un terme identique pour toutes les transitions de la forme $H_T^{dia} = \alpha_d B_z^2$. En exprimant cet Hamiltonien dans une base définie par $\{T_{+1(-1,0)}, \uparrow\}, |T_{+1(-1,0)}, \Downarrow\}$ i.e.

$$\left\{ \left|\frac{5}{2}\right\rangle, \left|-\frac{1}{2}\right\rangle, \left|\frac{1}{2}\right\rangle, \left|-\frac{5}{2}\right\rangle, \left|\frac{3}{2}\right\rangle, \left|-\frac{3}{2}\right\rangle \right\} \text{ nous obtenons :} \right\}$$

$H = \frac{\mu_{\rm B} B_z}{2}$	$\left(-\widetilde{\Delta}_0 + g_e + g_{h1}\right)$	g _{h2}	0	0	0	0	(58)
	g _{h2}	$\widetilde{\Delta}_0 + g_e - g_{h1}$	0	0	0	0	
	0	0	$-\widetilde{\Delta}_0 - g_e + g_{h1}$	g _{h2}	0	0	
	0	0	g _{h2}	$\widetilde{\Delta}_0 - g_e - g_{h1}$	0	0	
	0	0	0	0	g_{h1}	g _{h2}	
	0	0	0	0	g _{h2}	$-g_{h1}$	

Avec $g_e = g_e^s + g_e^p$. Il apparaît alors trois blocs distincts. Dans chaque bloc, les deux spins de trou possibles sont représentés avec une configuration différente des électrons (le bloc T_{+1} puis T_{-1} puis T_0). Nous obtenons l'énergie propre pour les états initiaux que nous désignons par la projection de leur moment angulaire à champ nul, puis nous les suivrons par continuité :

$$E_{1} = \frac{1}{2} (g_{e}\mu_{B}B_{z}) - \sqrt{\frac{\tilde{\Delta}_{0}^{2}}{2}} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\tilde{\Delta}_{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \leftrightarrow \left|\frac{5}{2}\right\rangle^{"}$$

$$E_{2} = \frac{1}{2} (g_{e}\mu_{B}B_{z}) + \sqrt{\frac{\tilde{\Delta}_{0}^{2}}{2}} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\tilde{\Delta}_{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \leftrightarrow \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{"}$$

$$E_{3} = -\frac{1}{2} (g_{e}\mu_{B}B_{z}) - \sqrt{\frac{\tilde{\Delta}_{0}^{2}}{2}} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\tilde{\Delta}_{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \leftrightarrow \left|-\frac{5}{2}\right\rangle^{"}$$

$$E_{4} = -\frac{1}{2} (g_{e}\mu_{B}B_{z}) + \sqrt{\frac{\tilde{\Delta}_{0}^{2}}{2}} + g_{h}^{2}\mu_{B}^{2}B_{z}^{2} - 2g_{h1}\frac{\tilde{\Delta}_{0}}{2}\mu_{B}B_{z}} \leftrightarrow \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{"}$$

$$E_{5} = \frac{1}{2} (g_{h}\mu_{B}B_{z}) \leftrightarrow \left|\frac{3}{2}\right\rangle^{"}$$

$$E_{6} = -\frac{1}{2} (g_{h}\mu_{B}B_{z}) \leftrightarrow \left|-\frac{3}{2}\right\rangle^{"}$$
(59)

Nous nous intéressons aux transitions émettant en σ^+ (sous champ magnétique B_z positif ou négatif). Elles peuvent provenir des états initiaux comportant $|\downarrow\rangle^{s}$, c'est-à-dire pour X^{-*} les états initiaux +1/2, ±3/2 et -5/2.

A champ nul, pour que la transition soit autorisée en σ^+ , il faut aussi un trou $\left| \uparrow \right\rangle^s$ [transitions *l et 2* de la Figure 65].

Lors de l'application du champ magnétique, toutes les transitions comportant $|\downarrow\rangle^{s}$ deviennent autorisées *[transitions 3 et 4]*. Ce qui nous donne donc quatre transitions par polarisation. Expérimentalement, nous avons vu que la transition à plus haute énergie ne se clive pas, alors que la transition basse énergie présente à champ nul se sépare en deux. Les états noirs à champ nul n'apparaissent pas dans cette mesure, mais ils seront observés pour XX⁻ (voir Figure 67) ou pour QDC-Nov2013 (voir Figure 66).

La modélisation a été réalisée avec les valeurs de g_{h1}^s , g_{h2}^s et g_e^s déterminée sur X⁻ et la valeur expérimentale $\tilde{\Delta}_0$ mesurée à champ nul. Les paramètres ajustables de la modélisation sont donc : g_e^p , le shift diamagnétique (α_d) qui est ajouté manuellement pour chaque transition ainsi que la largeur de la transition à mi-hauteur (γ) sans incidence sur la détermination de g_e^p et α_d . La forme générale, en particulier l'apparition des états noirs, est bien reproduite par le modèle (voir Figure 66)



Figure 66 : Cartographie d'intensité d'émission théorique (gauche) et expérimentale (droite) d'X^{-*} pour QDC-Nov2013. Les paramètres utilisés pour la modélisation sont, $g_e^p = 0.47$, $\alpha_d = 5\mu eV.T^{-2}$, $\gamma = 25\mu eV$ et les paramètres issus des expériences sur X⁻ et X^{-*} : $\tilde{\Delta}_0 = 190\mu eV$, $g_e^s = 0.46$, $g_{h1}^s = -0.18$, $g_{h2}^s = 0.74$.

Les valeurs extraites de la modélisation pour g_e^s et g_e^p sont comparables. Le faible nombre de raies ainsi que leur bonne séparation permettent une mesure directe du facteur *g* de l'électron sur une orbitale *p*. Les transitions 2 et 4 définies en Figure 65 sont séparées en énergie par $g_h^s \mu_B B_z$: la valeur mesurée est $g_h^s = 0.75 \pm 0.05$, proche de la valeur mesurée pour X⁻ et utilisée dans la modélisation ($g_h = 0.76$).

En utilisant des transitions en polarisation croisée (2 et 2' et 4 et 4' de la Figure 65) qui sont séparées en énergie par $g_e^p \mu_B B_z$, nous obtenons $g_e^p = 0.45 \pm 0.05$ contre 0.47 utilisé pour la modélisation. Les autres combinaisons de raies en polarisation croisée sont des combinaisons de $g_e^p + g_h^s$ permettant d'affiner la détermination de ces valeurs. Les transitions de X^{-*} sont donc suffisamment isolées pour déterminer les facteurs *g* électroniques pour les orbitales *s* et *p* et le tenseur *g* des trous pour les orbitales s^{15} .

Nous pouvons remarquer que les transitions étudiées ne concernent que la recombinaison de particules sur des orbitales s, nous n'avons pas d'indications sur la partie orbitalaire du facteur g pour une orbitale p, elles n'ont qu'un rôle spectateur dans cette transition, leur contribution s'annule donc entre l'état final et initial.

¹⁵ en incluant aussi les ratios d'intensité pour la détermination du tenseur g des trous

De plus, le complexe XX⁻ a une structure fine en miroir de X^{-*}, car X^{-*} apparaît dans l'état final de XX⁻. De plus, d'un point de vue de l'échange coulombien et des propriétés magnétooptiques, XX⁻ est équivalent à un électron p seul (état final de X^{-*}). Pour XX⁻, nous avons observé l'apparition des états noirs et une structure en miroir présentant une inversion en énergie de l'ordre des transitions (voir Figure 67).



Figure 67 : Cartographie d'intensité d'émission pour XX^- en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014. La signature magnéto-optique est le miroir de celle de X^{-*} (une fois soustrait le décalage diamagnétique).

4.1.3.3.2 Trion chaud X^{+*}

Cet état excité de X^+ apparaît dans le même domaine de tensions appliquées que le trion positivement chargé mais il présente une structure fine en doublet à champ nul. Nous postulerons donc qu'il s'agit de X^{+*} . Ce qui sera ensuite confirmé par la modélisation.

L'état initial de X^{+*} consiste en deux trous (*s* et *p*) avec un électron de conduction *s*. C'est la situation symétrique de X^{-*} en inversant le rôle des électrons et des trous. Son comportement magnétique très différent de X^{-*} illustrera le rôle différent des électrons et des trous en magnéto-optique pour les boîtes (111). En négligeant l'état singulet comme précédemment, nous avons donc trois états initiaux séparés en énergie par l'échange (électron *s*)-(trou *s* + trou

$$p): \widetilde{\Delta}_{0}^{X^{+^{*}}} = \frac{1}{2} \left(\Delta_{sp}^{eh} + \Delta_{ss}^{eh} \right). L' \text{état final est un trou } p \text{ seul (voir Figure 68).}$$



Figure 68 : Cartographie d'intensité d'émission pour X+* en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\widehat{\uparrow}(\widehat{\downarrow})$ indique les états de trous mélangés à fort champ et $\uparrow(\downarrow)$ indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont repérés à champ nul par la projection de leur moment angulaire total.

Commençons par rappeler le couplage entre les différents états de spin du trou. Avec l'application d'un champ magnétique longitudinal, nous ne pouvons plus représenter les trous pur $h \pm = \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle$ mais par avec spin un mélange de un ces spins $\widetilde{\mathbf{h}}_{+} = \alpha \left| \frac{3}{2} \right\rangle + \beta \left| -\frac{3}{2} \right\rangle, \widetilde{\mathbf{h}}_{-} = \alpha^{*} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle - \beta^{*} \left| \frac{3}{2} \right\rangle$ noté par les spins effectifs¹⁶ $\left| \widetilde{\mathbb{1}} \right\rangle, \left| \widetilde{\mathbb{1}} \right\rangle$ respectivement. Donc si à champ magnétique nul, un électron $\left|\frac{1}{2}\right\rangle$ recombine avec h_+ , après application d'un champ magnétique, il peut recombiner avec \tilde{h}_{\perp} mais aussi avec \tilde{h}_{-} car ce dernier est une superposition cohérente contenant aussi l'état $\left|+\frac{3}{2}\right\rangle$. Ceci ne suffit pas à expliquer toutes les raies observées. Nous allons maintenant nous intéresser aux couplages qui existent entre les différents états à deux particules sur des orbitales différentes pour les trous. Pour cela, nous négligerons les couplages spin-orbite sur les orbitales p.

Nous avons l'Hamiltonien Zeeman pour les trous *s* dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$:

¹⁶ Ces états se correspondent par renversement du temps, tout comme $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$.

$$H_{z,h}^{s} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1}^{s} & g_{h2}^{s} \\ g_{h2}^{s} & -g_{h1}^{s} \end{pmatrix}$$
(60)

Pour les trous *p*, nous négligerons le couplage spin-orbite. Nous obtenons alors dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$:

$$H_{z,h}^{p} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1}^{p} & g_{h2}^{p} \\ g_{h2}^{p} & -g_{h1}^{p} \end{pmatrix}$$
(61)

où g_{h1}^p et g_{h2}^p représentent les termes du tenseur *g* du trou sur l'orbital *p*.

Pour résumer, l'Hamiltonien Zeeman pour les trous s'écrit dans la base $\left\{ \left| s, \frac{3}{2} \right\rangle, \left| s, -\frac{3}{2} \right\rangle, \left| p, \frac{3}{2} \right\rangle, \left| p, -\frac{3}{2} \right\rangle \right\} :$ $H_{z,h} = \frac{1}{2} \mu_B B_z \begin{pmatrix} g_{h1}^s & g_{h2}^s & 0 & 0 \\ g_{h2}^s & -g_{h1}^s & 0 & 0 \\ 0 & 0 & g_{h1}^p & g_{h2}^p \\ 0 & 0 & g_{h2}^p & -g_{h1}^p \end{pmatrix}$ (62)

Nous voulons maintenant calculer les éléments de matrice entre un trou *s* et un trou *p* formant un triplet. Dans la base $\left\{ |s,m\rangle, |p,m'\rangle, m,m'=\pm \frac{3}{2} \right\}$, les éléments de matrice se calculent selon :

$$\left\langle \mathbf{p}, \mathbf{m}_{1}^{'} \left| \left\langle \mathbf{s}, \mathbf{m}_{1} \left| \mathbf{H}_{z,h} \right| \mathbf{s}, \mathbf{m} \right\rangle \right| \mathbf{p}, \mathbf{m}^{'} \right\rangle$$

$$= \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \left[\delta_{\mathbf{m}_{1}^{'}, \mathbf{m}^{'}}^{\mathbf{p}, \mathbf{p}} \left\langle \mathbf{s}, \mathbf{m}_{1} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{s} \right| \mathbf{s}, \mathbf{m} \right\rangle + \delta_{\mathbf{m}_{1}^{'}, \mathbf{m}}^{\mathbf{s}, \mathbf{s}} \left\langle \mathbf{p}, \mathbf{m}_{1}^{'} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{p} \right| \mathbf{p}, \mathbf{m}^{'} \right\rangle \right]$$

$$(63)$$

En utilisant les équations (60)-(63), nous calculons les différents éléments de matrice d'une ligne :

$$\left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h} \right| \frac{3}{2}^{s} \right\rangle \left| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \left[1 \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{s} \right| \frac{3}{2}^{s} \right\rangle + 1 \left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{p} \right| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle \right] = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} (\mathbf{g}_{h1}^{s} + \mathbf{g}_{h1}^{p})$$

$$\left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h} \right| \frac{3}{2}^{s} \right\rangle \right| - \frac{3}{2}^{p} \right\rangle = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \left[0 \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{s} \right| \frac{3}{2}^{s} \right\rangle + 1 \left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{p} \right| - \frac{3}{2}^{p} \right\rangle \right] = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \mathbf{g}_{h2}^{p}$$

$$\left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h} \right| - \frac{3}{2}^{s} \right\rangle \right| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \left[1 \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{s} \right| - \frac{3}{2}^{s} \right\rangle + 0 \left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{p} \right| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle \right] = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \mathbf{g}_{h2}^{s}$$

$$\left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \left\langle \frac{3}{2}^{s} \right| \mathbf{H}_{z,h} \right| - \frac{3}{2}^{s} \right\rangle \right| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \left[1 \left\langle \frac{3}{2}^{s} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{s} \right| - \frac{3}{2}^{s} \right\rangle + 0 \left\langle \frac{3}{2}^{p} \left| \mathbf{H}_{z,h}^{p} \right| \frac{3}{2}^{p} \right\rangle \right] = \frac{\mu_{B} \mathbf{B}_{z}}{2} \mathbf{g}_{h2}^{s}$$

$$\left\langle \frac{66}{2} \right\rangle$$

$$\left\langle \frac{3^{p}}{2} \left| \left\langle \frac{3^{s}}{2} \left| \mathbf{H}_{\mathbf{z},\mathbf{h}} \right| - \frac{3^{s}}{2} \right\rangle \right| - \frac{3^{p}}{2} \right\rangle = \frac{\mu_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{z}}}{2} \left[0 \left\langle \frac{3^{s}}{2} \left| \mathbf{H}_{\mathbf{z},\mathbf{h}}^{s} \right| \frac{3^{s}}{2} \right\rangle + 0 \left\langle \frac{3^{p}}{2} \left| \mathbf{H}_{\mathbf{z},\mathbf{h}}^{p} \right| \frac{3^{p}}{2} \right\rangle \right] = 0$$
(67)

Nous trouvons donc pour la matrice de l'Hamiltonien Zeeman d'un système de deux trous trou sur l'état l'autre l'état avec un S et sur р, dans la base $\left\{ \left|\frac{3}{2}\right\rangle^{s} \left|\frac{3}{2}\right\rangle^{p}, \left|\frac{3}{2}\right\rangle^{s} \left|-\frac{3}{2}\right\rangle^{p}, \left|-\frac{3}{2}\right\rangle^{s} \left|\frac{3}{2}\right\rangle^{p}, \left|-\frac{3}{2}\right\rangle^{s} \left|-\frac{3}{2}\right\rangle^{p} \right\} :\right\}$ $H_{z,h} = \begin{pmatrix} g_{h1} + g_{h1}^{c} & g_{h2}^{c} & g_{h2}^{s} & 0 \\ g_{h2}^{p} & g_{h1}^{s} - g_{h1}^{p} & 0 & g_{h2}^{s} \\ g_{h2}^{s} & 0 & -(g_{h1}^{s} - g_{h1}^{p}) & g_{h2}^{p} \\ 0 & g_{h2}^{s} & g_{h2}^{p} & -(g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p}) \end{pmatrix} \frac{\mu_{B}B_{z}}{2}$ (68)

Nous allons maintenant changer de base pour exprimer $H_{z,h}$ dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{p} + \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{p} \right), \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{p} \right) \right\}$,

correspondant à la base triplet/singulet ; nous obtenons :

$$H_{z,h} = \frac{\mu_{B}B_{z}}{2} \begin{pmatrix} g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p} & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & 0 & \left| \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} - g_{h2}^{s}) \right| \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & 0 & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & (g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p}) \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & -(g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p}) & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{s} - g_{h2}^{p}) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} - g_{h2}^{s}) & (g_{h1}^{s} - g_{h1}^{p}) & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{s} - g_{h2}^{p}) & g_{h1}^{s} - g_{h1}^{p} \end{pmatrix}$$
(69)

Comme pour X^{-*}, il est clair que les termes de couplages entre les états triplets et le singulet son très faible par rapport au clivage d'échange coulombien entre les deux types d'état. Nous pouvons alors séparer les états antisymétriques en spin et les états symétriques en spin par permutation des deux particules. Nous pouvons donc traiter séparément le sous-espace des triplets de celui du singulet de spin. Dans la base définie par les trois premiers états

symétriques de l'équation (69)
$$\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{p}, \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| \frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{p} + \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| \frac{3}{2} \right\rangle^{p} \right\}, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{s} \left| -\frac{3}{2} \right\rangle^{p} \right\}$$
 que

nous noterons par la suite $\{|T_{+3}\rangle, |T_{0}\rangle, |T_{-3}\rangle\}$. La restriction $\widetilde{H}_{z,h}$ de $H_{z,h}$ au sous-espace engendré par les états triplets s'écrit donc :

$$\widetilde{H}_{z,h} = \frac{\mu_{B}B_{z}}{2} \begin{pmatrix} g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p} & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & 0\\ \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & 0 & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s})\\ 0 & \frac{1}{\sqrt{2}}(g_{h2}^{p} + g_{h2}^{s}) & -(g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p}) \end{pmatrix}$$

$$\widetilde{H}_{z,h} = (g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p})\mu_{B}B_{z}\hat{I}_{z}^{h} + (g_{h2}^{s} + g_{h2}^{p})\mu_{B}B_{z}\hat{I}_{x}^{h}$$
(70)

En exprimant l'équation (70), en terme de matrice de pseudo spin et de matrice de Pauli et en ajoutant l'Hamiltonien d'échange coulombien nous obtenons un Hamiltonien effectif :

$$\mathcal{H}^{X^{+*}} = -\widetilde{\Delta}_{0}\sigma_{z}^{e}I_{z}^{h} + \frac{1}{2}g_{e}^{s}\sigma_{z}^{e}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2}(g_{h1}^{s} + g_{h1}^{p})I_{z}^{h}\mu_{B}B_{z} + \frac{1}{2}(g_{h2}^{s} + g_{h2}^{p})I_{x}^{h}\mu_{B}B_{z}$$
(71)

Le premier terme décrit l'échange coulombien d'un électron *s* avec deux trous *p* et *s* : $(\tilde{\Delta}_0 = \Delta_0^{sp} + \Delta_0^{ss})$, le deuxième terme décrit la dérive en champ magnétique liée à l'électron sur l'orbitale *s*. Le troisième terme décrit la dérive en champ magnétique des trous pour les termes diagonaux du tenseur du facteur *g* des trous. Le dernier terme dit « non-colinéaire » décrit la dérive due aux termes non diagonaux de ce tenseur.

En regroupant les six états possibles en fonction du spin de l'électron pour les trous ayant un pseudo spin de +3,-3,0 (-3,+3,0) pour le bloc 1 (2), nous obtenons une matrice bloc diagonale

exprimée dans la base $\left\{ \left| \frac{7}{2} \right\rangle, \left| -\frac{5}{2} \right\rangle, \left| \frac{1}{2} \right\rangle, \left| -\frac{7}{2} \right\rangle, \left| \frac{5}{2} \right\rangle, \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \right\}$:

$$\frac{\mu_{B}B_{z}}{2} \begin{pmatrix} -\tilde{\Delta}_{0} + g_{e}^{s} + g_{h1} & 0 & \sqrt{2}g_{h2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{\Delta}_{0} + g_{e}^{s} - g_{h1} & \sqrt{2}g_{h2} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{2}g_{h2}}{\sqrt{2}g_{h2}} & \frac{\sqrt{2}g_{h2}}{\sqrt{2}g_{h2}} & g_{e}^{s} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\tilde{\Delta}_{0} - g_{e}^{s} - g_{h1} & 0 & \sqrt{2}g_{h2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \tilde{\Delta}_{0} - g_{e}^{s} + g_{h1} & \sqrt{2}g_{h2} \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}g_{h2} & \sqrt{2}g_{h2} & -g_{e}^{s} \end{pmatrix}$$
(72)

Avec $g_{h1(h2)} = \frac{g_{h1(h2)}^s + g_{h1(h2)}^p}{2}$. Nous pouvons traiter ces deux blocs indépendamment. Les règles de sélection optiques étant définies par l'électron, chaque bloc correspond à une polarisation donnée de la lumière émise.

Nous obtenons alors l'énergie propre pour les états initiaux que nous désignerons par la projection de leur moment angulaire à champ nul et que nous suivrons donc par continuité :

$$E_{1} = \frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) - \sqrt{\left(\frac{\Delta_{0}}{2} - \frac{g_{h1} \mu_{B} B_{z}}{4}\right)^{2} + g_{h2}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2}} \leftrightarrow \left|\frac{7}{2}\right\rangle^{"}}$$

$$E_{2} = \frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) + \sqrt{\left(\frac{\Delta_{0}}{2} - \frac{g_{h1} \mu_{B} B_{z}}{4}\right)^{2} + g_{h2}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2}} \leftrightarrow \left|\frac{5}{2}\right\rangle^{"}}$$

$$E_{3} = -\frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) - \sqrt{\left(\frac{\Delta_{0}}{2} + \frac{g_{h1} \mu_{B} B_{z}}{4}\right)^{2} + g_{h2}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2}} \leftrightarrow \left|-\frac{7}{2}\right\rangle^{"}}$$

$$E_{4} = -\frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) + \sqrt{\left(\frac{\Delta_{0}}{2} + \frac{g_{h1} \mu_{B} B_{z}}{4}\right)^{2} + g_{h2}^{2} \mu_{B}^{2} B_{z}^{2}} \leftrightarrow \left|-\frac{5}{2}\right\rangle^{"}}$$

$$E_{5} = \frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) \leftrightarrow \left|\frac{1}{2}\right\rangle^{"}}$$

$$E_{6} = -\frac{1}{2} (g_{e} \mu_{B} B_{z}) \leftrightarrow \left|-\frac{1}{2}\right\rangle^{"}$$
(73)

Nous nous intéressons toujours aux transitions émettant en polarisation σ^+ (sous champ magnétique B_z positif ou négatif) ayant donc un électron $|\downarrow\rangle_s$ dans leur état initial. Pour X^{+*} , cela concerne les états initiaux +5/2, -1/2 et -7/2, séparés par $\widetilde{\Delta}_0^{X^{+*}}$ à champ nul.

L'électron $|\downarrow\rangle_s$ recombine alors avec un trou $|\Uparrow\rangle_s$ ce qui donne des recombinaisons depuis les états initiaux +5/2 (-1/2) vers les états finaux +3/2 (-3/2) *[transitions 1 et 3* de la Figure 68]. La transition entre l'état -7/2 et -3/2 est interdite à champ nul (pas d'état de trou $|\Uparrow\rangle_s$).

Lors de l'application du champ magnétique, les recombinaisons avec l'autre état de trou deviennent possibles pour les états initiaux +5/2 (-1/2) vers les états finaux -3/2 (+3/2) [*transitions 2 et 4* de la Figure 68].

Le triplet $T_{\pm 3}$ se couplant avec le triplet T_0 , les transitions depuis l'état -7/2 vers les deux états finaux +3/2 (-3/2) deviennent aussi possibles *[transition 5 et 6* de la Figure 68].

Ce complexe a donc six raies par polarisation, deux pour chaque état de départ, il est difficile de compter les raies dans les spectres expérimentaux à cause des croisements entre X^{+*} et X^{2+} en champ magnétique et de l'élargissement spectrale des transitions mais au moins 5 raies sont visibles pour des champs magnétiques négatifs (Figure 68) ou positifs (Figure 69). Un nombre de raies différents selon le sens du champ magnétique est observé. Les deux transitions actives à champ nul étant séparées en énergie pour un sens de champ (ici positif) elles vont s'éloigner alors que pour l'autre sens (ici négatif) elles vont se croiser.

La modélisation a été réalisée avec les valeurs de g_{h1}^s , g_{h2}^s et g_e^s déterminées sur X⁺ et la valeur expérimentale $\tilde{\Delta}_0$ mesurée à champ nul. Les seuls paramètres ajustables de la modélisation se réduisent aux paramètres g_{h1}^p , g_{h2}^p , le shift diamagnétique (α_d) qui est ajouté manuellement et la largeur de transitions à mi-hauteur (γ). La forme générale du spectre magnéto-optique est bien décrite par notre modèle et l'accord est quantitativement bon pour certaines boîtes (voir Figure 69).



Figure 69 : Cartographie d'intensité d'émission théorique (gauche) et expérimentale (droite) de X^{+*} pour QDK-Nov2013. Les paramètres utilisés pour la modélisation sont, $g_{h1}^p = 2,5$, $g_{h2}^p = 0,4$, $\alpha_d = 13\mu eV.T^{-2}$, $\gamma = 40\mu eV$ et les paramètres issus des expériences sur X⁺ et X^{+*} : $\tilde{\Delta}_0 = 250\mu eV$, $g_e^s = 0,45$, $g_{h1}^s = 0,38$, $g_{h2}^s = 0,76$.

En mesurant la position en énergie des différentes raies de la transition, nous pourrions théoriquement extraire les valeurs de g_h^p . Pour ce complexe, les transitions 1 et 2 de la Figure 68 sont séparées en énergie de $g_h^p \mu_B B_z$ ce qui permettrait d'extraire g_h^p . Le mélange des transitions et la difficulté d'identification des raies, nous oblige à passer par la modélisation pour extraire un ordre de grandeur des valeurs de \tilde{g}_h^p . Celle-ci sont plus élevées que pour le tenseur \tilde{g}_h^s , en particulier pour g_{hl} ($g_{h1}^p = 2,5; g_{h1}^s = 0,4; g_{h2}^p = 0,4; g_{h2}^s = 0,8$)¹⁷.

Nous pouvons remarquer que les transitions étudiées ne concernent que la recombinaison de particules sur des orbitales *s*, nous n'avons pas d'indication sur la partie orbitalaire du facteur *g* pour une orbitale *p*. L'électron occupant cet état orbital n'a qu'un rôle spectateur lors de ces transitions, et l'effet Zeeman associé à cet état se compense entre l'état initial et l'état final.

¹⁷ Le modèle permet d'extraire une valeur pour $g_{h1(h2)} = \frac{g_{h1(h2)}^s + g_{h1(h2)}^p}{2}$, à laquelle nous soustrayons $g_{h1(h2)}^s$ pour obtenir $g_{h1(h2)}^p$

4.1.3.3.3 L'exciton doublement positivement chargé X²⁺

Ce complexe apparaît dans un domaine de tensions appliquées plus faibles que le trion positivement chargé (X^+) . Nous postulons qu'il s'agit de X^{2+} .

L'exciton doublement chargé (X²⁺) peut être vu comme un exciton chargé avec deux trous appareillés sur l'état *s* (voir Figure 70). Les différents états sont désignés par le total des projections de leurs spins sur l'axe de quantification à champ nul. Son état initial est donc un doublet séparé en énergie par l'échange (électron *s*)-(trou *p*) : $\tilde{\Delta}_0^{X^{2+}} = \Delta_{sp}^{eh}$. L'état final est un trou *s* et un trou *p*. Nous décrivons uniquement les transitions vers l'état triplet électrons dans cette section. La magnéto-spectroscopie des transitions vers l'état singulet est beaucoup moins riche.



Figure 70 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{2+} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\hat{\uparrow}$ $(\hat{\downarrow})$ indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont repérés à champ nul par la projection de leur moment angulaire total.

En utilisant l'étude effectuée sur X^{+*} (section 4.1.3.3.2), intéressons nous aux transitions en polarisation σ^+ (sous champ magnétique B_z positif ou négatif). La polarisation de la lumière est fixée par l'électron pour ce complexe. Nous portons donc notre intérêt sur les états initiaux avec un spin électronique $|\downarrow\rangle_s$, c'est-à-dire les états initiaux -2 et +1.

A champ nul, l'électron $|\downarrow\rangle_s$ recombine avec un trou $|\uparrow\rangle_s$ ce qui donne des recombinaisons depuis les états initiaux -2 (+1) vers un état final -3 (0) [*transitions 1 et 3* de la Figure 70].

Lors de l'application du champ magnétique l'électron $\left|\downarrow\right\rangle_{s}$ peut maintenant recombiner avec

le trou $|\widetilde{\downarrow}\rangle_s$ ce qui autorise en plus les recombinaisons entre les états initiaux -2 (+1) vers les états finaux 0 (+3) *[transitions 2 et 5* de la Figure 70].

De plus le champ magnétique mélange les états triplets de trous T_0 et $T_{\pm 3}$, donc toutes les transitions permises entre un état initial et l'état final T_0 donnent lieu à des transitions permises entre cet état initial et $T_{\pm 3}$. Ceci rajoute la transition entre l'état initial +1 et l'état final -3 *[transition 4* de la Figure 70]. Ce qui nous donne un total de cinq transitions par polarisation.

A champ magnétique positif, cinq raies sont bien visibles sur le spectre dont deux partent de la transition à haute énergie à champ nul et trois de la transition basse énergie. A champ magnétique négatif nous observons seulement quatre raies dont une est plus large, elle est possiblement composée de deux raies qui sont trop proches pour être distinguées.

Un nombre de raies différents selon le sens du champ magnétique est observé pour plusieurs complexes. Les deux transitions actives à champ nul étant séparées en énergie pour un sens de champ (ici positif) elles vont s'éloigner alors que pour l'autre sens (ici négatif) elles vont se croiser (voir Figure 70).

Nous pouvons donc raisonnablement identifier ce complexe à X^{2+} . Nous n'avons pas tenté de modéliser les transitions ici, du fait du nombre de paramètres inconnus.

4.1.3.3.4 L'exciton doublement négativement chargé X²⁻

Ce complexe apparaît pour un domaine de tensions appliquées supérieures à celui correspondant au trion négativement chargé (X⁻), il le remplace. Nous postulons donc qu'il s'agit de X^{2-} .

L'exciton doublement chargé négativement (X^{2-}) comporte deux électrons appareillés sur l'état *s*, un électron sur l'état *p* et un trou sur l'état *s* (Jovanov et al 2010).

L'état initial du point de vue de l'échange coulombien et de l'effet Zeeman, est équivalent à un électron p avec un trou s. En négligeant l'état singulet, nous avons donc deux niveaux d'énergie initiaux séparés par l'échange (trou s)-(électron p) : $\tilde{\Delta}_0^{X^{2-}} = \Delta_{ps}^{eh}$. L'état final est un

ensemble de deux électrons (s et p) dans l'état triplet ou singulet. Comme précédemment, nous nous restreindrons aux états triplets pour les trous.



Figure 71 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{2-} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. If $(\widetilde{\downarrow})$ indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont repérés à champ nul par la projection de leur moment angulaire total.

En utilisant l'étude effectuée sur X^{*}(section 4.1.3.3.1), nous nous intéressons maintenant aux transitions émettant en σ^+ (sous champ magnétique B_z positifs ou négatif).

A champ nul, les transitions autorisées dépendent ici du spin du trou. En effet le singulet d'électron sur l'orbitale *s* permet dans tous les cas une recombinaison avec un trou s. Les états initiaux pouvant recombiner sont donc ceux comportant $|\hat{\uparrow}\rangle_s$ qui permettent une recombinaison avec $|\downarrow\rangle_s$, c'est-à-dire les états initiaux +1 (+2) [transitions 1 et 2 de la Figure 71].

Lors de l'application d'un champ magnétique, les recombinaisons avec les trous opposés $|\widetilde{\Psi}\rangle_{s}$ deviennent possibles *[transitions 3 et 4* de la Figure 71]. Ce qui nous donne donc quatre transitions.

Expérimentalement, nous observons seulement trois transitions, la transition à haute énergie ne semble pas se cliver. La modélisation de ce complexe de manière phénoménologique

nécessiterait de séparer en énergie les deux orbitales p (Durnev et al 2016) ce qui au moins pour QDP-Feb2014 est une hypothèse contredite par l'expérience.

Malgré cela, ce complexe est le premier à avoir un état singulet visible à plus faible énergie et une intensité plus importante pour les transitions entre électron p et trou s (voir Annexe 9). Nous pouvons donc raisonnablement l'identifier à X^{2-} .

4.1.3.3.5 L'exciton triplement négativement chargé X³⁻

Ce complexe apparaît dans un domaine de tensions appliquées plus fortes que X^{2-} . Nous postulerons donc qu'il s'agit de X^{3-} .

Ce complexe est constitué de deux électrons appareillés sur l'état s, un trou sur l'état s et deux électrons sur les états p (voir Figure 72).



Figure 72 : (a) Cartographie d'intensité d'émission d' X^{3-} pour un spectre large (bleu <100 coups et rouge >7000 coups), et (b) un zoom sur la partie principale à champ nul (bleu <100 coups et rouge >30000 coups) pour QDP-Feb2014.

Les états initiaux de ce complexe sont plus divers. Nous pouvons avoir un électron sur chaque orbitale p en configuration triplet (ou singulet) mais aussi les deux électrons appareillés sur la même orbitale. La configuration stable est déterminée par la comparaison entre la distance en énergie des deux orbitales p (p_x et p_y) avec l'énergie d'échange entre deux électrons (de l'ordre du meV).

La configuration en triplet donne lieu à l'apparition d'une structure fine comportant trois transitions à champ nul (Urbaszek et al 2003). Tandis qu'une configuration des électrons en deux singulets donne lieu à une seule raie. A champ nul dans la plupart des expériences, nous observons un triplet (voir Figure 72). Il arrive dans certaines boîtes que l'état d'équilibre soit

un singulet sur la même orbitale (voir Figure 73). Nous connaissons donc l'état stable à champ nul.



Figure 73 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{3-} pour QDU-sep2014, aucune structure fine n'est visible à champ nul.

Par contre lorsqu'on applique un champ magnétique, on augmente la séparation en énergie des deux orbitales¹⁸; si cette séparation en énergie devient supérieure à l'énergie d'échange, la configuration d'équilibre change. Le spectre en champ magnétique sera donc sensible au rapport de population entre ces deux configurations.

Le spectre de X^{3-} est dominé par l'hybridation des électrons *p* avec un continuum d'état, ce qui donne cette forme caractéristique en « aile de papillon » (Karrai et al 2004) et ne permet donc pas une étude simple du nombre de raies.

4.1.3.3.6 L'exciton quadruplement chargé X⁴⁻

Pour certaines boîtes, un complexe apparaît pour un domaine de tensions appliquées supérieures à celui de X^{3-} . Nous partirons du principe qu'il s'agit de X^{4-} .

Pour X⁴⁻, nous présentons les résultats pour une autre boîte. Le comportement de QDP-feb2014 n'étant pas « standard » : X⁴⁻ n'existe pas sans X³⁻ qui masque quelque peu la signature magnéto-optique de X⁴⁻.

¹⁸ Dans un des sens du champ magnétique, nous commençons par rapprocher les orbitales avant potentiellement de les ré-éloigner mais il existe toujours un sens où nous ne faisons que les éloigner.

L'exciton quadruplement chargé négativement est composé de deux singulets d'électrons (un sur l'orbitale *s* l'autre sur l'orbitale *p*) plus un électron seul sur l'orbital *p* ainsi qu'un trou *s*, ce qui donne deux états séparés par l'échange (électron *p*)-trou $s : \widetilde{\Delta}_0^{X^{4-}} = \Delta_{ps}^{eh}$.

L'état final est donc un singulet d'électrons sur une orbitale p et un électron non appareillé sur l'autre orbitale p et un électron non appareillé sur l'état s. L'état final est donc caractérisé par deux électrons s et p formant des états triplets ou singulets (voir Figure 74). L'état final en configuration singulet sera négligé.



Figure 74 : Cartographie d'intensité d'émission pour X⁴⁻ en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDH-sep2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\hat{\uparrow}$ $(\hat{\downarrow})$ indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont repérés à champ nul par la projection de leur moment angulaire total.

A champ nul, les transitions autorisées dépendent ici du spin du trou. En effet tous les états d'électrons sont présents. Les états initiaux pouvant recombiner en σ^+ sont donc ceux comportant $\left|\widetilde{\Pi}\right\rangle_s$ pouvant recombiner avec $\left|\downarrow\right\rangle_s$, c'est-à-dire les états initiaux +1 (+2)

[transitions 1 et 2 de la Figure 74].

Lors de l'application d'un champ magnétique, les recombinaisons avec les trous de spin opposés deviennent possibles *[transition 3 et 4* de la Figure 74]. Ce qui nous donne donc quatre transitions par polarisation.

Expérimentalement, nous observons deux transitions à champ magnétique nul, la transition à haute énergie se sépare bien en deux avec l'application d'un champ magnétique. Pour la

transition à basse énergie, la largeur de la transition peut cacher la séparation de la raie en deux.

Ce complexe apparaît dans un domaine de tensions supérieures à X^{3-} . De plus le clivage du doublet prévu par l'analyse à fort champ est compatible avec les résultats expérimentaux. Nous attribuerons donc ce complexe à X^{4-} .

4.1.4 Magnéto spectroscopie des transitions 25-40 meV au dessus des transitions électron s-trou s

La magnéto-optique des transitions à plus haute énergie donne des indications sur les règles de sélection optique en absorption qui apparaissent très strictes pour ces transitions. Le facteur de Landé orbitalaire de l'électron p est aussi évalué autour de 2 (voir Annexe 9 pour plus de détails).

4.2 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré les résultats expérimentaux des mesures magnétooptiques en champ magnétique appliqué longitudinal pour différents complexes allant de X^{2+} à X^{4-} . Ceci permet de confirmer les hypothèses faites sur la nature des complexes au chapitre 3 qui reposait sur l'analyse du nombre de raies de chaque complexe à champ nul. Pour les complexes les moins chargés (X^{-*} et X^{+*}), une modélisation de l'évolution en champ magnétique de ces complexes est proposée en prenant en compte l'interaction coulombienne d'échange et l'effet Zeeman. Ces modèles permettent d'extraire la contribution de spin des facteurs de Landé des particules sur les orbitales p. Nous trouvons des valeurs équivalentes entre les orbitales s et p pour le facteur g électronique et des valeurs différentes entre les tenseurs gyromagnétiques des orbitales s et p pour les trous.

5 Chapitre 5 : Etudes des interactions entre spins électroniques et nucléaires dans les boîtes GaAs (111) non contraintes

Les principaux processus de relaxation et de décohérence du spin des charges dans les semiconducteurs massifs liées à la diffusion (élastique ou inélastique) ne s'appliquent pas aux systèmes confinés dans les trois directions de l'espace comme le sont les boîtes quantiques. Le temps de cohérence des spins électroniques est alors limité par les processus d'échange coulombien et/ou par leur interaction avec des spins nucléaires fluctuants. L'interaction hyperfine entre les trous et les noyaux est environ un ordre de grandeur plus faible que celle des électrons (Fisher et al 2008, Testelin et al 2009). Les temps de cohérence des spins de trou sont donc plus longs que ceux des électrons permettant un meilleur contrôle ou stockage de leur état quantique. C'est pourquoi, les trous potentiellement sont intéressants pour la manipulation cohérente d'états quantiques (De Greve et al 2011, Greilich et al 2011, Godden et al 2012). Les mesures expérimentales de l'interaction hyperfine pour le trou sont délicates : soit elles sont réalisées sur des ensembles de boîtes (Eble et al 2009, Desfond et al 2010), soit elles sont réalisés sur des boîtes individuelles, ce qui nécessite la détection de transitions quasi « interdites » (Fallahi et al 2010, Chekhovitch et al 2012) où la faible contribution des trous à l'effet Overhauser peut alors être séparée de celle des électrons. L'avantage des boîtes orientées selon (111) est l'apparition pour les trions (X^+ et X^-) de quatre transitions autorisées en champ magnétique longitudinal pour toutes les boîtes de symétrie C_{3v}. Ces quatre transitions permettent d'extraire les constantes hyperfines des électrons et des trous pour « toutes » les boîtes et non plus seulement pour des boîtes « pathologiques », c'est-à-dire celles de symétrie plus basse que les boîtes de symétrie C_{2v} pour une orientation selon (001). Dans ce chapitre, nous évaluerons l'interaction hyperfine dans deux boîtes quantiques différentes représentant des cas typiques, en mesurant le rapport les constantes hyperfines pour l'électron et le trou. Des phénomènes de bistabilité en champ magnétique de la polarisation nucléaire et électronique seront aussi obervés et analysés.

L'obtention d'une polarisation dynamique des noyaux atomiques nécessite la possibilité de générer une polarisation des spins électroniques substantielle par pompage optique. Ceci est possible en excitation non résonante (à 1,91eV avec He :Ne) pour les échantillons à charge

non ajustable et uniquement avec une excitation quasi-résonante pour les échantillons à charge ajustable utilisés dans ce manuscrit.

Nous présenterons les résultats des mesures de l'interaction hyperfine en champ magnétique longitudinal sur le trion positivement chargé. Un aperçu des résultats pour le trion en champ transverse sera ensuite présenté.

5.1 Magnéto-spectroscopie en champ longitudinal des boîtes (111)

Nous commençons par présenter les conditions expérimentales permettant d'optimiser la polarisation dynamique du champ nucléaire. Puis nous expliciterons la méthode expérimentale urtilisée pour extraire séparément les décalages Overhauser de l'électron et du trou.

Lors des études en champ magnétique longitudinal, nous nous sommes intéressés aux phénomènes de bistabilité mais aussi à la contribution des trous au décalage Overhauser (Testelin et al 2009). Pour évaluer cette contribution, nous mesurons les différents décalages entre les quatre transitions optiques émises par les trions X^{\pm} sur leur états de plus basse énergie.

Pour trouver les conditions où le pompage optique des spins nucléaires est le plus efficace, nous nous plaçons en excitation quasi-résonante au voisinage d'un phonon optique au dessus de la transition, et nous choisissons une tension appliquée située au milieu de la plage d'existence du trion étudié, puis nous déplaçons l'énergie du laser d'excitation pour maximiser l'intensité d'émission. Pour finir, une étude de la polarisation électronique et nucléaire est effectuée autour de la tension choisie précédemment (voir Figure 75). Le pic de polarisation nucléaire n'a pas lieu pour les tensions où l'intensité d'émission est la plus élevée (voir aussi section 3.2.3.4.3.2). Selon les conditions expérimentales, le pic de polarisation nucléaire peut se produire pour une tension où l'intensité d'émission est de l'ordre de la moitié de l'intensité maximale (Figure 75 à gauche) ou 10% de cette intensité (Figure 75 à droite) mais les deux optima coïncident rarement dans la pratique.



Figure 75 : Polarisation circulaire (à gauche, en noir) et décalage Overhauser (à droite, en bleu) en fonction de la tension appliquée pour QDF-déc2014. Les inserts montrent l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée, les flèches orange sont positionnées à la tension pour laquelle a lieu le pic de polarisation nucléaire.

Le couplage entre les états de trou permet la détection simultanée des états noirs et brillants mais cela entraîne aussi une difficulté pour résoudre spectralement les transitions à faible champ magnétique appliqué du fait de la largeur des raies (voir section 3.2.3.1). Le clivage en énergie (Δ_{tot}) entre les deux transitions émettant dans une même polarisation (i.e. où l'état de conduction a le même spin) provient de deux contributions : l'effet Zeeman et une contribution du champ nucléaire effectif sur les trous (voir Figure 76).

Pour l'électron, la définition d'un champ magnétique effectif, somme des contributions du champ appliqué et du champ nucléaire est sans ambiguïté car le tenseur gyromagnétique de l'électron est scalaire :

$$\Delta_{\text{tot}}^{e} = A \langle I \rangle + g_{e} \mu_{B} B = g_{e} \mu_{B} (B_{n} + B) = g_{e} \mu_{B} B_{\text{eff}}$$
(74)

Où nous notons : *A* la constante hyperfine de l'électron, et B_n est défini par $B_n \cong A\langle I \rangle / g_e \mu_B$. Pour le trou, la définition d'un champ magnétique effectif est plus compliquée¹⁹. La présence de tenseurs différents pour la contribution Zeeman et celle du champ nucléaire, nous amène à

¹⁹ La difficulté de cette approche vient, comme nous le verrons, du fait que le décalage Overhauser des trous est une fonction de B_z , et l'on ne peut a priori pas séparer de façon simple la contribution des noyaux de celle de l'effet Zeeman.

préférer définir le décalage total pour le trou comme une perturbation du facteur de Landé par rapport au cas sans champ nucléaire traité en section 4.1 :

$$\Delta_{\text{tot}}^{\text{h}} = g_{\text{h}}^{\text{eff}} \mu_{\text{B}} B_{\text{z}}$$
(75)

A très faible champ magnétique (Δ^{h}_{tot} <<largeur des transitions), le décalage entre les deux transitions est négligeable. Nous ne résolvons qu'une seule transition et la détermination de son énergie d'émission est peu perturbée. La contribution des trous n'est donc pas détectable dans cette région.

A champ intermédiaire, la précision de détermination de la position en énergie des raies est faible. La modélisation de l'intensité par un couple de gaussienne n'est pas univoque (transitions sur un nombre trop faible de pixels). Nous ne nous intéresserons donc pas à cette région. Ceci explique pourquoi nous n'avons pas reporté nos mesures prises entre 0,5 et 1,5T.

A fort champ ($\Delta_{tot}^h >$ largeur des transitions), la précision de détermination de l'énergie d'émission devient satisfaisante car les transitions sont bien résolues sur un nombre de pixels plus important.

Nous travaillerons donc essentiellement à partir des champs magnétiques rélativement élevés (B>1,5T) dans un domaine où le clivage en énergie des transitions est supérieur à leur largeur.



Figure 76 : Spectres de photoluminescence de X^+ en fonction du champ magnétique sous excitation quasirésonante à 1,756eV pour une détection co (rouge) ou cross-polarisée (bleu) avec le laser pour QDH-juin2015. La différence d'énergie entre deux transitions émettant dans la même polarisation est d'environ 50µeV par Tesla de champ total effectif.

Intéressons-nous maintenant à l'ordre des transitions lors d'une rampe en champ magnétique. Avec l'apparition d'effets hyperfins, le champ magnétique effectif perçu par les électrons ou les trous peut changer de signe. Les positions entre les transitions noires et brillantes peuvent donc s'inverser. De même, les transitions brillantes ou noires de polarisations différentes peuvent aussi s'inverser. Tous les cas possibles sont décrits ci-dessous en Figure 77.



Figure 77 : Position des quatre transitions d'un trion (X⁺ ou X⁻) en fonction des valeurs de décalage effectif pour chaque particule (électron ou trou). Cette figure modélise le décalage pour $g_e=0.4$, $g_h=0.9$ pour B^{eff}=±5 pour chaque particule.

Interessons-nous au cas que nous pouvons renconter lors d'une rampe en champ longitudinal avec $g_{h1}<0$: le signe de g_{h1} décide de la position des états les plus intenses (en absence de champ nucléaire), ici à l'exterieur du quadruplet pour B^{eff}>0, (si $g_{h1}>0$ le raisonnement est le même en inversant les états brillants et noirs), $g_e>0$ et le champ magnétique appliqué $B_z>0$.

A champ nul ou faible, nous avons une polarisation nucléaire qui engendre un champ magnétique qui s'oppose au champ magnétique appliqué $B_e^{eff} < 0$ et $g_h^{eff} > 0$, nous avons donc $g_h^{eff} B_z > 0$ et $g_e B_e^{eff} < 0$ (cas 4 de la Figure 77).

Le champ nucléaire a un effet plus faible sur les trous (voir section 5.1.1.1), il y a donc un champ limite pour lequel le signe de g_h^{eff} change et devient négatif avec toujours $g_e B_e^{eff} < 0$ (cas 3 de la Figure 77)²⁰.

²⁰ Le champ nucléaire perçu pouvant être très différent pour l'électron et le trou, le croisement des transitions brillantes a lieu pour $g_{h}^{eff} B_{z} = g_{e} B_{eff}^{e}$

Pour une valeur de champ magnétique plus élevée, le champ nucléaire s'effondre et nous obtenons à partir de cette valeur de champ magnétique : $g_h^{eff} B_z < 0$ et $g_e B_e^{eff} > 0$ (cas 2 de la Figure 77).

Les positions des transitions en Figure 76 suivent les cas décrits ci-dessus pour le cas 4 pour $B_z = 0$ et le cas 3 pour $B_z = 1$ et 2T et le cas 2 pour $B_z = 3,5T$). Le cas 1 ne peut se produire que pour des valeurs de g_{h1} positives (où il remplace le cas 3). En effet le champ nucléaire perçu par les trous est plus faible que celui perçu par les électrons. Le champ magnétique appliqué surpasse le champ nucléaire perçu par les trous avant celui perçu par les électrons.

Pour résumer, nous obtenons donc deux valeurs de champ magnétique pour lesquelles l'ordre des transitions va changer : les transitions vont donc se croiser lorsque le champ magnétique varie.

5.1.1 Résultats expérimentaux sur le trion positivement chargé X⁺

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser au trion X^+ où la polarisation de la lumière est directement liée à la polarisation de l'électron dans le complexe. De plus, pendant le temps d'existence de X^+ , les noyaux perçoivent le champ Knight généré par l'électron polarisé (Sallen et al 2014).

Dans un deuxième temps, nous nous intéresserons à X^- où la polarisation de la lumière est liée à la polarisation moyenne du trou et où l'électron résidant est partiellement polarisé juste après l'émission du photon jusqu'à la capture suivante.

L'excitation quasi-résonante est réalisée en excitant à un phonon optique au-dessus de la transition afin de limiter la variation d'efficacité de l'excitation liée aux variations d'énergie du niveau excité avec le champ magnétique, l'énergie des transitions *s-s* variant moins en champ magnétique que l'énergie des transitions *p-s*. Une excitation utilisant un état électron *p*-trou *s* amenerait à une efficacité d'excitation quasi-nulle à partir de quelques Tesla (voir 3.2.3.4.2 et Figure 96) alors qu'en utilisant une transition assistée par l'émission d'un phonon optique l'intensité émise varie peu en fonction du champ magnétique (voir Figure 78).



Figure 78 : Spectre d'intensité d'émission de X⁻ sous excitation linéaire quasi-résonante à un phonon optique de la transition principale à 1T (noir) et 8T (rouge) pour QDH-juin2015.

5.1.1.1 Détermination du décalage Overhauser pour les électrons et les trous

Après avoir précisé les conventions utilisées, les résultats experimentaux seront présentés.

5.1.1.1 Convention utilisée pour la présentation des résultats expérimentaux

Avant de présenter les résultats expérimentaux, nous allons expliciter les conventions dans lesquelles nous nous plaçons. Nous considérons que la polarisation d'excitation est σ^+ , que le champ magnétique appliqué suivant l'axe de quantification *z* est positif et que les deux facteurs de Landé effectifs de l'électron (g_e) et le facteur effectif du trou (g_h) sont positifs. La polarisation des électrons photogénérés est donc négative (-0.5 P_{circ}). La constante hyperfine des électrons étant positive, la polarisation nucléaire moyenne $\langle I_z \rangle$ créée est négative²¹ (elle s'oppose donc bien au champ magnétique appliqué, ce dont nous aurons confirmation par la suite). Le champ nucléaire perçu par l'électron est donc également négatif et le champ perçu

²¹ Nous verrons plus loin que la polarisation nucléaire est générée uniquement par les électrons.
par les trous est de signe contraire à la constante hyperfine effective des trous C_{eff} . Le Tableau 7 résume les signes des différentes grandeurs dans cette convention.

$\mathbf{B}_{appliqu\acute{e}}$	$\left< \mathbf{S}_{z}^{e} \right>$	$\langle I_z \rangle$	ge	$g_{\rm h}$	OHS_h^n / B_n^h	OHS_e^n / B_e^h
>0	<0	<0	>0	>0	-Signe(C _{eff})	<0

Tableau 7 : Signe des différentes grandeurs physiques utilisées pour décrire les effets nucléaires sous excitation optique polarisée σ^+ dans la convention *B*, $g_h = \sqrt{g_{h1}^2 + g_{h2}^2}$. Le signe de g_e peut quand à lui être déterminé (il est positif dans ces boîtes) voir Sallen et al 2014.

5.1.1.1.2 Interaction hyperfine avec les trous

Les transitions pouvant se croiser en fonction du signe du champ magnétique effectif perçu par les charges, nous choisissons de nommer $|h\pm\rangle$ l'état de trou qui serait $\left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ lorsque $g_{h2}=0$.

Le décalage Zeeman entre l'état $|h+\rangle$ et $|h-\rangle$ est alors égal pour $\langle I_z \rangle = 0$ à (voir Figure 79) :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm deman} = {\rm Signe}\,(g_{\rm h1})g_{\rm h}\mu_{\rm B}B_{\rm z} \tag{76}$$



Figure 79 : Position des niveaux $|\mathbf{h}+\rangle$ et $|\mathbf{h}-\rangle$ en fonction du signe de g_{hI} pour un champ magnétique appliqué positif.

L'interaction entre le trou et les noyaux est décrite au premier ordre, à partir de la théorie des groupes (Koster et al 1963), de façon analogue à l'effet Zeeman : l'interaction entre un trou et les spins nucléaires dans la boîte est décrit dans l'approximation du champ nucléaire moyen par un tenseur défini par deux coefficients C_1 (diagonal) et C_2 (non diagonal) :

$$H_{h}^{OHS} = \frac{1}{2} \langle I_{z} \rangle \begin{pmatrix} C_{1} & C_{2} \\ C_{2} & -C_{1} \end{pmatrix}$$
(77)

où $\langle I_z \rangle$, représente le moment angulaire moyen des noyaux de la boîte. Comme précédemment, nous travaillons dans la représentation $\Gamma_5+\Gamma_6$ pour les trous lourds, la représentation de tout opérateur pouvant coupler ces états sous la forme $(\Gamma_5+\Gamma_6)\times(\Gamma_5+\Gamma_6)=2\Gamma_1+2\Gamma_2$. La représentation Γ_2 apparaissant deux fois, on voit que deux coefficients indépendants seront là aussi nécessaires pour décrire le couplage entre trou par $\langle I_z \rangle$ qui appartient à la représentation Γ_2 . Nous définirons la constante *C* en analogie avec g_h comme $C = \sqrt{C_1^2 + C_2^2}$. Cette constante mesure le décalage en énergie obtenu sur les états de trous $|h + \rangle$ et $|h - \rangle$ provoqué par le champ nucléaire $\langle I_z \rangle$ en l'absence de champ magnétique appliqué.

Le décalage total (Zeeman plus Overhauser) est donc décrit par l'hamiltonien effectif :

$$H_{h}^{tot} = \begin{pmatrix} g_{h1}\mu_{B}B_{z} + C_{1}\langle I_{z} \rangle & g_{h2}\mu_{B}B_{z} + C_{2}\langle I_{z} \rangle \\ g_{h2}\mu_{B}B_{z} + C_{2}\langle I_{z} \rangle & -g_{h1}\mu_{B}B_{z} - C_{1}\langle I_{z} \rangle \end{pmatrix}$$
(78)

ce qui nous amène à un clivage entre niveaux d'énergie égal à :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm tot} = \operatorname{Sgn}\left(C_1 \langle I_z \rangle + g_{\rm hl} \mu_{\rm B} B_z \right) / \left(g_{\rm hl} \mu_{\rm B} B_z + C_1 \langle I_z \rangle\right)^2 + \left(g_{\rm h2} \mu_{\rm B} B_z + C_2 \langle I_z \rangle\right)^2$$
(79)

et donc un décalage Overhauser égal à :

$$\Delta_{h}^{OHS} = \operatorname{Sgn}\left(C_{1}\langle I_{z}\rangle + g_{h1}\mu_{B}B_{z}\rangle / (g_{h1}\mu_{B}B_{z} + C_{1}\langle I_{z}\rangle)^{2} + (g_{h2}\mu_{B}B_{z} + C_{2}\langle I_{z}\rangle)^{2} - \operatorname{Sgn}\left(g_{h1}\right)g_{h}\mu_{B}B_{z}$$

$$= \Delta_{h}^{tot}(|h+\rangle - |h-\rangle) - \operatorname{Sgn}\left(g_{h1}\right)g_{h}\mu_{B}B_{z}$$

$$(80)$$

Nous introduisons alors un coefficient effectif C_{eff} , selon la définition:

$$C_{eff} = \text{Signe} \left(C_{1} \langle I_{z} \rangle + g_{h1} \mu_{B} B_{z} \right) \sqrt{\left(\frac{g_{h1} \mu_{B} B_{z} + C_{1} \langle I_{z} \rangle}{\langle I_{z} \rangle} \right)^{2} + \left(\frac{g_{h2} \mu_{B} B_{z} + C_{2} \langle I_{z} \rangle}{\langle I_{z} \rangle} \right)^{2}} - \text{Signe} \left(g_{h1} \right) \frac{g_{h} \mu_{B} B_{z}}{\langle I_{z} \rangle}$$

$$(81)$$

Evaluons l'équation (81) dans deux cas limites simples :

$$\left|C_{i}\langle I_{z}\rangle\right| \gg \left|g_{hi}\mu_{B}B_{z}\right| \text{ alors } C_{eff} \approx \text{Sgn}\left(C_{1}\right)C$$
(82)

$$\left|C_{i}\left\langle I_{z}\right\rangle\right| \ll \left|g_{hi}\mu_{B}B_{z}\right| \text{ alors } C_{eff} = \operatorname{Sgn}\left(g_{h1}\left(\frac{g_{h1}}{g_{h}}C_{1} + \frac{g_{h2}}{g_{h}}C_{2}\right)\right)$$
(83)

Pour plus de détails voir l'Annexe 8. L'équation (83) provenant du développement limité de l'équation (80) au premier ordre par rapport à $C\langle I_z \rangle / g_h \mu_B B_z$, nous constatons qu'à fort champ la valeur de C_{eff} dépend de g_{h1} et g_{h2} .

5.1.1.1.3 Interaction hyperfine avec les électrons

L'interaction hyperfine avec l'électron est décrite par un seul terme²². Nous obtenons la formule simple suivante pour extraire le décalage Overhauser à partir des mesures :

$$\Delta_{\rm e}^{\rm OHS} = A \langle I_z \rangle = \Delta_{\rm e}^{\rm tot} - g_{\rm e} \mu_{\rm B} B_z \tag{84}$$

Le clivage global en énergie Δ_e^{tot} mesuré entre les états brillants et noirs en polarisation croisée est positif ($\Delta_e^{tot} > 0$) en l'absence de champ nucléaire.

5.1.1.2 Résultats expérimentaux

Le décalage Overhauser est obtenu en comparant la position en énergie des quatre transitions de X⁺ obtenues sous excitation polarisée circulairement, permettant de créer une polarisation nucléaire en régime dynamique (DNP), avec leur position sous excitation linéaire (configuration où la polarisation dynamique des noyaux est nulle). La position des raies d'émission pour chaque hélicité est déterminée avec une précision ($\pm 1\mu eV$) au moyen d'un ajustement avec un modèle à deux gaussiennes pour modéliser les transitions. Le décalage Overhauser est mesuré en soustrayant les différences d'énergie entre les couples de transitions pour ces deux excitations.

Dans l'état initial avant recombinaison, seul l'électron (les deux trous sont appareillés en singulet sur l'état *s*) est sensible aux différents champs magnétiques en présence (appliqué et nucléaire). Alors que dans l'état final, c'est le trou restant qui est sensible aux champs magnétiques appliqué et nucléaire effectifs. Les mesures étant faites à partir de la transition

²² Les termes non colinéaires definit par $\frac{A_{\perp}}{2} \left(\sigma_x \langle I_x \rangle + \sigma_y \langle I_y \rangle \right)$ couplent des états très éloignés en énergie (électrons avec états de trou légers, ...), ils seront donc négligés dans la suite. De plus le champ nucléaire se contruisant suivant l'axe *z*, les valeurs moyennes de la polarisation nucléaire suivant x (ou y) sont nulles.

optique de X⁺, nous mesurons directement le décalage Overhauser sur l'électron mais l'opposé du décalage Overhauser sur le trou, celui-ci apparaisant dans l'état final.

Pour les trous, il reste à déterminer quelles transitions recombinent sur $|h +\rangle$ et sur $|h -\rangle$. Pour QDH-juin2015 et QDF-déc2014, nous avons $g_{h1}<0$, $|h +\rangle$ est donc la transition à plus basse énergie.



Figure 80 : Energie d'émission des quatre transitions de X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV en fonction du champ magnétique appliqué pour une excitation circulaire (haut) et linéaire (bas). Les états dénotés brillants (noirs) sont les états les plus (moins) intenses pour QDH-juin2015. L'expérience est réalisée en champ magnétique B_z croissant.

Contrairement aux boîtes d'InGaAs où les effets nucléaires génèrent un champ magnétique effectif légèrement plus fort que le champ appliqué (avec un signe contraire) (Eble et al 2006, Maletinsky et al 2007, Tartakovskii et al 2007, Krebs et al 2008), dans ces expériences le champ nucléaire généré est nettement plus fort que le champ appliqué, tout comme dans les expériences réalisées sur les boîtes d'interface (Gammon et al 2001). Le changement d'ordre des raies les plus intenses avec celles l'étant moins en devient plus visible. Avant l'effondrement du champ nucléaire, le champ effectif perçu par l'électron est important et négatif jusqu'à un champ magnétique appliqué d'environ 3T. Nous le mesurons par l'écart entre les transitions rouge-bleu (ou noir-vert) en Figure 80. Après l'effondrement de la

polarisation nucléaire qui se produit au champ critique $B_{c1}=3,4T$, le champ magnétique effectif pour l'électron devient positif (inversion des transitions « noires » et « brillantes »).

Nous pouvons également observer que les raies « brillantes » émettant en σ^+ et σ^- inversent leurs positions pour un champ appliqué de l'ordre de 400 mT. Les transitions brillantes sont séparées de $\Delta^e + \Delta^h$ pour $g_{h1} < 0$ (elles sont séparées de $\left|\Delta^e - \Delta^h\right|$ pour $g_{h1} > 0$). Nous avons donc au point de croisement des transitions à bas champ :

$$\Delta_{e}^{tot} + \Delta_{h}^{tot} = 0, \text{ i.e.}$$

$$g_{e}\mu_{B}B_{z}^{cr} + A\langle I_{z}^{cr}\rangle + Sgn\left(C_{1}\langle I_{z}^{cr}\rangle + g_{h1}\mu_{B}B_{z}^{cr}\rangle\right)\sqrt{\left(g_{h1}\mu_{B}B_{z}^{cr} + C_{1}\langle I_{z}^{cr}\rangle\right)^{2} + \left(g_{h2}\mu_{B}B_{z}^{cr} + C_{2}\langle I_{z}^{cr}\rangle\right)^{2}} = 0$$

$$(85)$$

Ceci nous amène en négligeant les termes du deuxième ordre en $C\langle I_z \rangle$ à la relation :

$$g_{h1}C_1 + g_{h2}C_2 = \frac{\left(g_e\mu_B B_z^{cr} + A\left\langle I_z^{cr}\right\rangle\right)^2 - \left(g_h\mu_B B_z^{cr}\right)^2}{2\mu_B B_z^{cr}\left\langle I_z^{cr}\right\rangle}$$
(86)

Où B_z^{cr} le champ magnétique de croisement des transitions brillantes. Cette équation permet de trouver une première relation (basée sur des résultats expérimentaux) pour C_1 et C_2 qui sont habituellement estimés par des méthodes atomistiques.

Nous pouvons maintenant extraire le décalage Overhauser des électrons et des trous. Rappelons que, selon la convention choisie, le champ nucléaire perçu par les électrons est négatif, nous représenterons donc l'opposé du décalage Overhauser des électrons par commodité.

Le décalage Overhauser mesuré est positif pour les trous. Mais cet effet ayant lieu dans l'état final de la transition étudiée, Nous mesurons directement l'opposé du décalage Overhauser pour les trous. L'opposé du décalage Overhauser des trous et donc également positif.

Les sources d'erreur lors de cette détermination dépendent :

(i) premièrement de la précision dans la mesure de l'énergie d'émission des transitions : la précision est de l'ordre de 1µeV dans la région dans laquelle la contribution des électrons et des trous est étudiée.

(ii) L'erreur dépend surtout de la détermination des facteurs de Landé pour la soustraction du décalage Zeeman en particulier pour les trous. Les barres d'erreurs représentent uniquement cette dernière erreur (voir Figure 81). L'erreur principale de cette mesure se situe donc sur les valeurs absolues moyennes des effets.



Figure 81 : L'opposé du décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z pour X^+ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

Nous pouvons donc calculer le ratio $OHS_{trou}/OHS_{électron}$ que nous noterons (C_{eff}/A) en référence aux valeurs de « constante » hyperfine en fonction du champ magnétique appliqué pour les trous (C_{eff}) et les électrons (A) (voir Figure 82).



Figure 82 : C_{eff} /A en fonction du champ magnétique pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015. Au dèla de 3,4T la précision des mesures est insuffisante.

Les valeurs de C_{eff}/A calculées ne donnent pas des informations utilisables après l'effondrement des effets nucléaires. Cependant entre 2,2 et 3,2T, ce rapport a une valeur sensiblement constante, autour de 20%, soit environ quatre fois la valeur mesurée dans des boîtes (001) à fluctuation d'interface de GaAs (Chekhovich et al 2012) et deux fois la valeur (avec un signe opposé) dans les boîtes d'InGaAs (Fallahi et al 2010, Chekhovich et al 2012) ainsi qu'une valeur proche de l'estimation théorique mais avec un signe opposé (Fischer et al 2008). Les premières mesures sur des ensembles de boîtes donnent des valeurs absolues comprises entre 3,5 et 5% (Eble et al 2009, Desfonds et al 2010) pour des boîtes d'InGaAs orientés selon l'axe (001) mais sans information sur le signe.

Nous avons vu que contrairement aux boîtes (001), le rapport des constantes hyperfines C_{eff}/A n'est pas une constante du matériau mais dépend aussi des valeurs des facteurs de Landé et du champ magnétique appliqué (voir section 5.1.1.1.2 et équation (80)-(83)). Nous allons préciser l'évolution de C_{eff} en fonction du champ magnétique.

Intéressons nous donc plus précisément au cas intermédiaire où C_{eff} dépend directement du champ magnétique appliqué et du champ nucléaire perçu par les trous.

Rappelons la valeur de C_{eff} donnée par l'équation (82) :

$$\begin{split} \mathbf{C}_{\mathrm{eff}} &= \mathrm{Signe} \left(\mathbf{C}_{1} \langle \mathbf{I}_{z} \rangle + \mathbf{g}_{\mathrm{h1}} \boldsymbol{\mu}_{\mathrm{B}} \mathbf{B}_{z} \right) \sqrt{ \left(\frac{\mathbf{g}_{\mathrm{h1}} \boldsymbol{\mu}_{\mathrm{B}} \mathbf{B}_{z} + \mathbf{C}_{1} \langle \mathbf{I}_{z} \rangle}{\langle \mathbf{I}_{z} \rangle} \right)^{2} + \left(\frac{\mathbf{g}_{\mathrm{h2}} \boldsymbol{\mu}_{\mathrm{B}} \mathbf{B}_{z} + \mathbf{C}_{2} \langle \mathbf{I}_{z} \rangle}{\langle \mathbf{I}_{z} \rangle} \right)^{2} \\ &- \mathrm{Signe} \left(\mathbf{g}_{\mathrm{h1}} \right) \frac{\mathbf{g}_{\mathrm{h}} \boldsymbol{\mu}_{\mathrm{B}} \mathbf{B}_{z}}{\langle \mathbf{I}_{z} \rangle} \end{split}$$

Notons qu'ici, contrairement aux boîtes (001), il n'est pas possible dans le cas général de séparer les contributions du champ magnétique externe et du champ nucléaire.

Pour modéliser les résultats expérimentaux de C_{eff} , nous avons besoin des valeurs de C_1 , C_2 et $\langle I_z \rangle$. Des estimations de $\langle I_z \rangle$ peuvent être réalisées en utilisant les valeurs de OHS_{électron} mesurées dans la plage de champ magnétique où les quatre transitions sont bien résolues spectralement ($\langle I_z \rangle = \frac{OHS_{électron}}{A}$). Pour une estimation des valeurs de C_1 et C_2 , l'équation (85) nous donne une première relation entre C_1 et C_2 .

En nous appuyant sur les calculs atomistiques basés sur l'approche de M. Glazov (Chekovitch et al 2013), nous obtenons deux relations liant C_1 et C_2 aux intégrales hyperfines pour des fonctions hydrogénoides p ou d.

$$\frac{C_{1}}{A} = \frac{12}{5} \left| \alpha_{p} \right|^{2} M_{p} - \frac{24}{7} \left| \alpha_{d} \right|^{2} M_{d}$$

$$\frac{C_{2}}{A} = -\frac{6\sqrt{2}}{7} \left| \alpha_{d} \right|^{2} M_{d}$$
(87)

149

Où $M_{p(d)}$ est l'intégrale hyperfine pour les orbitales p(d), et $a_{p(d)}$ le poids relatif des orbitales p(d). Il est intéressant de remarquer ici que le coefficient C_2 est entièrement déterminé par la contribution des orbitales de type d pour les états de valence.

En utilisant les estimations de $\tilde{M}_p = |\alpha_p|^2 M_p$ et $\tilde{M}_d = |\alpha_d|^2 M_d$ pour les boîtes de GaAs orienté selon (001) (Chekovitch et al 2013), nous obtenons une estimation de C₁/A =0,05 et C₂/A =-0,03. Cela aboutit à des valeurs de C_{eff}/A de l'ordre de 0,06 plus faible que celle mesurées. La mesure de C₂ pour chaque élément permettrait une estimation du poids des orbitales *d* pour ces éléments.

La précision des mesures est malheureusement insuffisante pour déterminer précisément les paramètres C_1 et C_2 . Pour les modélisations qui suivent, nous utilisons l'un des résultats obtenus : C_1 =-11 et C_2 =-15.

D'un point de vue théorique, dans la gamme de champ magnétique étudiée (2-4T), la valeur de C_{eff}/A est peu dépendante du champ externe appliqué quelles que soient les valeurs de champ nucléaire ($\frac{\Delta_h^{OHS}}{g_h \mu_B}$) perçu par le trou inférieur à 300mT (voir insert de la Figure 83).



Figure 83 : Rapport de la constante hyperfine du trou (C_{eff}) et de l'électron (A) en fonction du champ magnétique pour différents champs magnétiques nucléaires ($\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B$) perçus par le trou reporté dans le cartouche en utilisant l'équation (81) pour des valeurs de g_{h2} =0,67, g_{h1} =-0,3 avec C_1 =-11 et C_2 =-15. $\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B << B_z$ pour $B_z > 2T$.

Par contre, l'équation (85) est sensible au signe relatif entre C_2 et g_{h2} définissant la valeur de l'asymptote à fort champ, (nous ne connaissons que le signe et la valeur de g_{h1} et la valeur

absolue de g_{h2}) Les Figure 83 et Figure 84 montrent les différences de comportement en champ magnétique obtenues en inversant le signe de g_{h2} .



Figure 84 : Rapport de la constante hyperfine du trou (C_{eff}) et de l'électron (A) en fonction du champ magnétique pour différents champs magnétiques nucléaires ($\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B$) perçus par le trou reporté dans le cartouche en utilisant l'équation (81) pour des valeurs de g_{h2} =-0,67, g_{h1} =-0,3avec C₁ =-11 et C₂=-15. $\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B \ll B_z$ pour $B_z > 2T$.

Les variations de C_{eff}/A en fonction du champ magnétique sont donc faibles à fort champ magnétique ($B_z \gtrsim 2T$). Elles ne peuvent à elles seules expliquer la variation de C_{eff}/A observée expérimentalement (voir Figure 82).

Des mesures du rapport C_{eff}/A à plus faible champ magnétique (B_z<1T) permettraient de vérifier ce modèle et d'extraire le signe relatif entre C_2 et g_{h2} .

La constante hyperfine des trous est mesurée positive, donc le signe de g_{h2} est certainement positif pour QDH-juin2015.

Nous pouvons maintenant nous poser la question du rôle exact du trou dans le système couplé spin électronique-spin nucléaire. Participe-t-il à la génération de la polarisation nucléaire, où son rôle se limite-t-il à celui de spectateur percevant le champ nucléaire généré par l'électron de X^+ ?

Nous constatons que l'effondrement de la polarisation nucléaire a lieu lorsque les champs nucléaires et appliqués perçus par l'électron se compensent exactement (même valeur absolue et signe contraire) et non lorsque le champ appliqué compense la somme des champs perçus par l'électron et le trou (voir Figure 85). Ceci est une indication forte que la génération de la polarisation nucléaire dynamique est le fait de l'électron seul. Ceci sera aussi observé dans la deuxième boîte étudiée (voir Figure 89).



Figure 85 : Champs magnétiques Overhauser $(\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B)$ (rouge) et appliqué (facteur *g* experimentaux) (noir) perçus par le trou (gauche) ou l'électron (droite) pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

Intéressons-nous maintenant aux phénomènes de bistabilité du système électron-noyau sous champ magnétique longitudinal.

5.1.2 Bistabilité de la polarisation électronique et nucléaire en champ magnétique longitudinal

5.1.2.1 Résultats expérimentaux

Les rampes en champ magnétique présentés jusqu'ici étaient réalisées en partant d'un champ magnétique nul jusqu'à effondrement de la polarisation nucléaire, observée pour un champ critique B_{c1} . Nous effectuons immédiatement après une rampe décroissante afin de tester la bistabilité éventuelle de la polarisation électronique et nucléaire (voir Figure 86). La polarisation nucléaire réapparait brusquement dès que le champ magnétique est plus faible que le champ critique B_{c2} ($B_{c2} < B_{c1}$). Il apparaît ainsi que la polarisation nucléaire et la polarisation de spin électronique sont toutes les deux bistables entre deux champs critiques

 $B_{c1}=3,4T$ et $B_{c2}=2,3T$, soit un domaine de bistabilité d'une largueur d'environ 1T. Les effets sont comparables à ceux observés dans les boîtes InGaAs (Krebs et al 2008).



Figure 86 : Polarisation nucléaire sondée par la mesure du décalage Overhauser (haut) et polarisation de spin électronique sondée par mesure de la polarisation circulaire émise (bas) en fonction du champ magnétique appliqué pour une rampe croissante en champ magnétique (rouge) immédiatement suivie d'une rampe décroissante (noir) pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

Ces mesures ont été réalisées pour différentes tensions appliquées. Nous constatons que les valeurs des champs magnétiques critiques B_{c1} et B_{c2} varient faiblement en fonction de la tension appliquée (voir Figure 87). Le taux de polarisation nucléaire obtenu est également peu dépendant de la tension (voir Figure 87). La largeur du domaine de bistabilité et donc relativement peu sensible à la tension de polarisation, dans le domaine de tension correspondant à X⁺. Une situation analogue à été rencontrée dans les mesures de bistabilité du système électro-nucléaire réalisées précédemment dans l'équipe sur des boîtes d'InGaAs sous champ magnétique longitudinal sur une large plage de tension de polarisation (Nilson et al 2013b).



Figure 87 : Polarisation nucléaire sondée par la mesure du décalage Overhauser en fonction du champ magnétique appliqué pour une rampe croissante en champ magnétique (symbole plein) immédiatement suivie d'une rampe décroissante (symbole creux) pour une tension appliquée de 70mV (noir) ou 100mV (rouge) X^+ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

En ce qui concerne le creux de polarisation de la photoluminescence dans le domaine $3,1 < B_z < 3,4T$, il coïncide avec la réduction de l'écart entre les transitions les plus intenses et les moins intenses pour des polarisations émises différentes (transitions en bleu et rouge ou en vert et noir du haut de la Figure 88). Notons que cela correspond à la région où le champ magnétique externe est compensé quasi-exactement par le champ Overhauser de l'électron. Notre interprétation est que, dans ce domaine de champ appliqué, le champ magnétique total perçu par l'électron devient trop faible (voir Figure 88) pour écranter les fluctuations du champ nucléaire effectif (Merkulov et al 2002).



Figure 88 : Energie d'émission (haut) et polarisation circulaire émise (bas) en fonction du champ magnétique appliqué sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

Pour mieux visualiser le champ magnétique total perçu par l'électron, la Figure 89 représente ce champ magnétique total calculé en mesurant la moyenne du décalage des transitions bleurouge et vert-noir de la Figure 88. Pour la zone de champ magnétique appliquée dans la plage du creux de polarisation de spin électronique, le champ total perçu par l'électron est inférieur à 200 mT. Le creux de polarisation peut donc s'expliquer par une plus grande sensibilité du spin de l'électron vis-à-vis des fluctuations de champ nucléaire (Krebs et al 2008).



Figure 89 : Champ magnétique total perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué lors d'une rampe croissante de valeur de B_z sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015. Les barres orange représentent la plage de champ magnétique appliqué pour laquelle la polarisation circulaire émise est plus faible.

Pour vérifier que ces résultats ne sont pas le fruit de l'étude d'une boîte « pathologique » avec une forme, taille ou symétrie très particulière, nous avons analysé une deuxième boîte sur une autre partie de l'échantillon. Comme nous allons le constater ci-dessous, les résultats sont sensiblement identiques.



Figure 90 : Décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z . C_{eff}/A en fonction du champ magnétique (droite) pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,756 eV pour QDF-déc2014.

Les valeurs de décalage Overhauser sont beaucoup plus importantes dans cette boîte (voir Figure 90), les noyaux sont polarisés jusqu'à 50% avec un décalage Overhauser des électrons de 67µeV à comparer au décalage de 135µeV qui serait obtenu pour une polarisation totale des noyaux (Urbaszek et al 2013).



Figure 91 : Résumé des décalages Overhauser (haut) et du rapport des constantes hyperfines du trou et de l'électron (bas) pour les deux boîtes étudiées.

Les valeurs de C_{eff}/A de ces deux boîtes sont proches, autour de 0,2 dans la région de champ où ce rapport est stable ($B_z < B_{c1}$). Mais le comportement en champ magnétique est différent (augmentation ou baisse de C_{eff} avec l'augmentation du champ magnétique)²³. Deux mesures ne sont pas suffisantes pour avancer des hypothèses sur cette dépendance. Celle-ci pourrait provenir de facteurs de Landé différents (g_{h1} =-0,3 ; $|g_{h2}|$ =0,68 pour QDH-juin2015 contre g_{h1} =-0,7 ; $|g_{h2}|$ =0,67 pour QDF-dec2014) ou des valeurs de C_1 et C_2 liées à des formes, tailles de la boîte (X⁺ pour QDH-juin2015 émet autour de 1,712 eV contre 1,727eV pour X⁺ de QDF-déc2014).



Figure 92 : Polarisation nucléaire sondée par la mesure du décalage Overhauser (haut) et polarisation électronique sondée par mesure de la polarisation circulaire émise (bas) en fonction du champ magnétique appliqué pour une rampe croissante en champ magnétique (rouge) immédiatement suivie d'une rampe décroissante (noir) pour X^+ sous excitation quasi résonante à 1,756 eV pour QDF-déc2014.

Les champs magnétiques critiques sont proches pour ces deux boîtes malgré des polarisations nucléaires différentes (B_{c1} =3,6T et 50% de polarisation nucléaire pour QDF-déc2014 contre B_{c1} =3,4T et 25% de polarisation nucléaire pour QDH-juin2015), ces boîtes ont aussi des facteurs de Landé électroniques très différents. La valeur du champ critique B_{c1} dépend donc à la fois de la polarisation nucléaire maximale obtenue dans les conditions de la rampe mais aussi de la valeur du facteur *g* de l'électron (voir Figure 93). Les polarisations nucléaires sont très différentes entre les deux boîtes mais les champs magnétiques nucléaires effectifs perçus par l'électron sont proches.

²³ Les barres d'erreurs indiquent le domaine dans lequel est située la courbe d'évolution de Ceff/A en fonction de B_z (voir commentaire (ii) p137)

Idéalement, pour maximiser la précision de la mesure de C_{eff}/A , il faut que B_{c1} soit compris entre 2 T (séparation des quatre transitions) et 4-5 T (perte d'intensité par désaccord du laser et de la transition pompée et désalignement de la boîte avec le champ magnétique appliqué).



Figure 93 : Valeur absolue du champ magnétique total perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué pour QDF-dec2014 (rouge) et QDH-juin2015 (noir). La ligne orange représente la droite y=- B_z . Les flèches bleues indiquent les valeurs de champ pour lesquelles la polarisation électronique diminue.

5.1.3 Effet nucléaire à faible champ appliqué

A faible champ magnétique appliqué, la précision de la détermination du décalage Overhauser est plus faible du fait de la non-résolution des deux transitions émises pour chaque polarisation. Nous pouvons tout de même extraire un ordre de grandeur du décalage Overhauser total (voir Figure 94). Nous notons une augmentation rapide du décalage Overhauser puis un plafonnement de ce décalage autour de 30µeV en accord avec d'autres mesures effectuées sur des boîtes de GaAs (Gammon et al 2001)²⁴. Ce comportement diffère de celui observé dans les boîtes d'InGaAs où le champ nucléaire créé est légèrement supérieur au champ magnétique appliqué avant effondrement.

Une des différences entre les boîtes GaAs et InGaAs réside dans l'existence des effets quadrupolaires. Rappelons que les boîtes d'InGaAs, élaborées par méthode Stranski-

 $^{^{24}}$ Aucun effondrement du champ nucléaire n'est observé dans l'expérience de Gammon mais avec un décalage Overhauser de l'ordre de 90µeV et une valeur de g_e autour de 0,3 (Lejeune et al 1997), l'effondrement aurait lieu pour un champ magnétique appliqué supérieur à 5T, au dèla du domaine d'observation présenté dans cette publication

Krastanov présentent de façon inhérente un champ de contrainte interne important. Celui-ci génère des gradients de champ électrique responsables de l'effet quadrupolaire. Ces effets ne sont au contraire pas présents dans les boîtes de GaAs obtenues par épitaxie par gouttelettes. Les effets quadrupolaires sont responsables entre autre d'une augmentation de la relaxation des spins nucléaires (i.e. une perte de polarisation nucléaire) à faible champ magnétique appliqué. Dans les boîtes de GaAs, les effets quadrupolaires sont présents dans la barrière d'AlGaAs du fait du désordre d'alliage, mais ne sont pas présents dans la boîte elle-même. Ils ne limitent donc pas la génération de polarisation nucléaire à faible champ magnétique appliqué. Cela peut expliquer l'augmentation rapide de la polarisation nucléaire à faible champ magnétique champ jusqu'à une valeur de saturation.

Pour des champs magnétiques plus importants, la principale différence entre les boîtes de GaAs et d'InGaAs est la valeur du décalage en énergie de l'électron dû au champ magnétique effectif perçu ; de l'ordre de 15μ eV (Krebs et al 2008) au maximum dans les boîtes InGaAs, il monte jusqu'à 25μ eV pour les boîtes de GaAs étudiées ici (et autour de 90 μ eV pour les boîtes d'interface étudiées par Gammon et al 2001). Cette valeur seule n'est pas significative dans la génération de polarisation nucléaire décrite dans l'équation (39). Il faut aussi prendre en compte le temps de corrélation du retournement conjoint de spin entre électron et noyau. Par ailleurs, le temps de fuite T_d joue aussi un rôle important.

Dans le cas ou le taux $\frac{1}{T_{le}}$ diminue, tant qu'il reste plus court que le taux de fuite $\frac{1}{T_d}$, nous pouvons générer efficacement de la polarisation nucléaire, mais le temps pour atteindre la polarisation nucléaire des noyaux peut varier (selon T_d). Les expériences présentées dans ce chapitre, sont réalisées avec des temps caractéristiques de l'ordre de la minute. Nous n'avons donc pas d'information sur le temps de construction de la polarisation nucléaire.

En pratique, l'évolution de la polarisation nucléaire en fonction du champ magnétique externe ne peut être modélisée à partir du modèle élaboré pour les boîtes d'InGaAs (Krebs et al 2008) avec des paramètres réalistes. Nous n'avons donc pas pu extraire les différents paramètres utilisés dans le modèle décrit en section 1.7.



Figure 94 : Opposé de la somme du décalage Overhauser pour les électrons et les trous en fonction du champ magnétique appliqué B_z pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015.

Nous pouvons maintenant représenter le décalage Overhauser total en terme de champ magnétique perçu par l'électron. Pour cela nous considérerons que l'électron représente 5/6 du décalage total ($C_{eff}/A=0,2$) (voir Figure 95). Nous obtenons alors des champs effectifs perçus par l'électron supérieurs à 2T au début de la saturation du décalage Overhauser (à droite Figure 95)



Figure 95 : (gauche) Valeur absolue du champ magnétique total (nucléaire et appliqué) perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué. (droite) Champ magnétique nucléaire effectif perçu par l'électron.

Ce résultat semble confirmer que le taux de fuite de la polarisation dynamique des noyaux hors de la boîte est très faible, notament à faible champ appliqué ($B_z \leq 1T$).

5.2 Complément sur le trion négativement chargé X⁻ en champ magnétique longitudinal

La polarisation circulaire émise par ce complexe est liée directement à la polarisation du trou. Lorsque nous excitons dans la barrière, le trou perd sa polarisation avant d'être capturé, donc la polarisation émise devrait être a priori nulle. Dans certains échantillons, une polarisation négative (cross-polarisée) avec le laser apparaît pour des boîtes d'interface de GaAs (Bracker et al 2005) ou InGaAs (Cortez et al 2002) ou sur des boîtes de GaAs produites par épitaxie par gouttelettes (Sallen et al 2014).

En utilisant une excitation quasi-résonante, la lumière émise est co-polarisée avec le laser²⁵ (voir Figure 53) mais le décalage Overhauser est opposé à celui de X⁺. La polarisation nucléaire de X⁻ est créée par la polarisation du spin de l'électron résidant après recombinaison (dans l'état final). Pour X⁺, la polarisation nucléaire est créée par l'électron non apparié présent dans le trion (état initial).

Nous pouvons donc réaliser le même type d'étude que sur X^+ en appliquant un champ magnétique longitudinal.

L'excitation quasi-résonante en utilisant les états p d'électron est une résonance si brillante que nous l'avons étudiée en champ longitudinal (voir Annexe 9). Le problème principal est la perte d'intensité avec l'augmentation du champ magnétique (voir Figure 96) qui provient du désaccord spectral croissant entre la transition pompée et l'énergie du laser d'excitation lorsque le champ magnétique augmente.

²⁵ La polarisation circulaire de la lumière est comprise entre 40 et 70% pour les résonances d'absorption étudiées.



Figure 96 : Intensité totale émise par X⁻ sous excitation quasi résonante en utilisant les états p de la bande de conduction en fonction d'un champ magnétique appliqué. Insert : Spectre de luminescence de X⁻ à 0T (noir) et 4T (rouge) pour QDH-juin2015.

La différence majeure qui apparaît entre X^+ et X^- en champ longitudinal pour les boîtes (111) est la diminution rapide de la polarisation du spin du trou depuis sa valeur initiale vers une valeur gouvernée par les mélanges entre les états de spin des trous lourds. A champ magnétique nul, nous injectons optiquement un trou qui peut être considéré comme pur de spin et les règles de sélection optique en émission sont aussi pures.

Lors de l'application d'un champ magnétique :

• En émission : la polarisation tombe (mélange entre les différents états de trou lourd) à

une valeur définie par $\frac{g_{hl}}{g_h}$, soit ici une valeur maximale de 40%²⁶.

• En absorption : Pour une transition électron *p*-trou *s*, la polarisation du trou lourd maximale générée est gouvernée par le taux de mélange entre les trous lourds et les différents états de spin des trous légers (voir Annexe 9.2).

Expérimentalement, la polarisation de la lumière émise chute de 75% à environ 10% (voir Figure 97).

 $^{^{26}}$ Cette chute de polarisation circulaire de la lumière émise ne prend en compte que la recombinaison de la transition *s*-*s*.



Figure 97 : Polarisation circulaire totale émise par X^{-} sous excitation quasi résonante en utilisant les états p de la bande de conduction en fonction d'un champ magnétique appliqué pour QDH-juin2015.

En ce qui concerne l'ordre des transitions, nous observons le même phénomène que pour X⁺ (voir Figure 98) : une inversion de l'ordre des transitions brillantes à faible champ appliqué correspondant à $\Delta_{tot}^{e} + \Delta_{tot}^{h} = 0$, puis à plus fort champ l'inversion des états brillants et noirs correspondant à $B_z = -B_n^e$. Par contre il n'y a pas de décrochage brutal des transitions comme cela a pu être observé pour X⁺ ou pour X⁻ dans les boîtes d'InGaAs (Maletinsky et al 2007, Krebs et al 2008).



Figure 98 : Energie d'émission en fonction du champ magnétique appliqué pour X^- sous excitation quasi résonante à 1,747 eV pour QDH-juin2015.

Nous pouvons aussi extraire les décalages Overhauser du trou et de l'électron pour X⁻. Du point de vue des décalages liés aux champs magnétiques perçus par les charges, les trions X⁺ et X⁻ ont des états initiaux et finaux inversés. En conservant donc les mêmes conventions pour les mesures du décalage Overhauser, le signe de celui-ci sera inversé si le champ nucléaire a le même sens pour X⁺ et X⁻. De plus pour X⁻, g_{hl} est négatif donc nous conservons au final exactement les mêmes conventions que pour X⁺.

Les décalages Overhauser ont des valeurs comparables entre X^+ et X^- : une trentaine de μeV pour l'électron et autour de 5 μeV pour le trou (voir Figure 99). Ceci met en évidence le rôle prédominant des temps de corrélation dans la génération de polarisation nucléaire et non uniquement de la polarisation des porteurs (voir section 1.7). En effet avec une polarisation électronique environ 6 fois plus faible que pour X^+ , le coefficient de génération de polarisation nucléaire est équivalent. Nous générons donc une polarisation nucléaire d'au moins 15% (pour 20 μeV) avec une polarisation de spin des trous de l'ordre de 10%²⁷. Mais cette polarisation nucléaire est certainement créée plus lentement, ce qui pourrait expliquer la chute plus progressive de la polarisation nucléaire.

La diminution des effets nucléaires a lieu à plus faible champ pour X⁻ car le facteur *g* de l'électron est légèrement plus fort pour X⁻. Mais, étonnamment, le point d'annulation du champ magnétique effectif perçu par l'électron est situé après le début de la chute de la polarisation nucléaire (pour $B_z=2,3T$). Ceci confirme que l'effondrement de la polarisation nucléaire n'est pas de la même nature que pour X⁺. Nous appellerons champ magnétique limite (*B_l*), le champ magnétique appliqué pour lequel la polarisation nucléaire s'annule.

En ce qui concerne C_{eff}/A , le signe de la constante hyperfine des trous est le même entre X⁺ et X⁻. Sa valeur est du même ordre de grandeur que X⁺ avec une évolution comparable pour les champs magnétiques appliqués avant l'effondrement de la polarisation nucléaire. Lorsque le décalage Overhauser des électrons s'approche de zéro, la précision dans la détermination de C_{eff} chute drastiquement (la fonction C_{eff}/A diverge lorsque OHS_{électron} tend vers zéro).

Contrairement à X^+ , il ne semble pas rester une polarisation nucléaire résiduelle importante au-delà du champ critique (B>3T) pour X^- .

²⁷ Dans le cas où les fuites de polarisation nucléaire sont nulles, la valeur limite de $\langle I_z \rangle$ est donnée $par_{Qmoy}(\langle S_z^e \rangle - \langle S_z^e \rangle_0)$. La polarisation nucléaire peut donc être supérieure à la polarisation électronique.



Figure 99 : à gauche :Inverse du décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z ; à droite : C_{eff}/A en fonction du champ magnétique pour X⁻ sous excitation quasi résonante à 1,756 eV pour QDH-juin2015.

Le comportement en champ magnétique de la constante hyperfine effective est une particularité des boîtes ayant une symétrie trigonale. Pour confirmer et affiner le modèle développé dans ce chapitre, il serait intéressant de pouvoir mesurer le décalage Overhauser des trous à faible champ magnétique appliqué. Pour réaliser ces mesures, nous aurions besoin d'une sonde de la position des raies plus fine.

Toute l'analyse de nos expériences a été réalisée en supposant que les polarisations nucléaires du Gallium et de l'Arsenic étaient égales. Les valeurs de constante hyperfine des trous pour ces deux éléments ont probablement des signes contraires du fait de la différence d'hybridation entre les orbitales de type p et d pour les états de valence. La théorie développée dans (Chekhovich et al 2012) montre que la contribution des orbitales d aux états de valence est responsable du changement de signe de la constante hyperfine pour l'Arsenic, par rapport au Gallium. Une différence dans la polarisation nucléaire de Ga et As peut alors avoir une influence majeure sur la valeur, voire le signe de la constante hyperfine effective des trous. Des expériences de RMN sur ces échantillons permettraient de lever ce doute dans l'analyse des données et de déterminer séparément le tenseur hyperfin pour chacun de ces noyaux (Makhonin et al 2011).

5.3 Magnéto-spectroscopie en champ transverse des boîtes (111)

Le comportement en champ transverse des boîtes (111) est très différent de leur comportement en champ longitudinal. En effet le champ magnétique ne couplant pas les états de trous au premier ordre, nous avons un facteur de Landé effectif de trou évanescent dans cette configuration. Nous pouvons donc considérer que les propriétés magnétiques sont gouvernées alors majoritairement par l'électron.

5.3.1 Anisotropie du facteur de landé des électrons dans le plan

Nous avons dans un premier temps étudié l'anisotropie du facteur g pour l'électron et le trou dans le plan. Les valeurs de facteur g du trou sont trop faibles (autour de 0,05 contre 0,89 en champ longitudinal) pour permettre de confirmer l'isotropie du facteur g du trou dans le plan. Pour l'électron par contre, le facteur g transverse est isotrope dans la limite de la précision de notre détermination et a pour valeur environ 0,8 (contre 0,3 en champ longitudinal) (voir Figure 100).



Figure 100 : Valeurs des facteurs g pour l'électron et le trou dans le plan en fonction de l'angle depuis l'axe x pour QDC-sep2014.

5.3.2 Effet Hanle

Pour les études en champ transverse, nous étudions l'effet Hanle avec une contribution éventuelle du champ nucléaire (Sallen et al 2014).

De plus, nous avons étudié l'effet Hanle sous champ magnétique incliné en faisant varier l'angle d'inclinaison, en excitant dans la barrière des échantillons à charge non ajustable puis des échantillons à charge ajustable. Nous avons également réalisé les mêmes mesures sous excitation quasi résonante dans des échantillons à charge ajustable. Les résultats préliminaires obtenus sont reportés en Annexe 10.

5.4 Conclusion

Nous avons mesuré le rapport des constantes hyperfines de l'électron et du trou pour deux boîtes différentes. Ce rapport dépend du champ magnétique appliqué mais a une valeur proche de 0,2 pour les deux boîtes étudiées à champ magnétique modéré. Sous champ magnétique modéré, la constante hyperfine effective des trous est une fonction des constantes du matériau mais aussi de la forme et de la taille de la boîte à travers le tenseur de Landé des trous. Il devient alors possible, en principe, de modifier le signe et l'amplitude de cette constante en jouant sur la taille et la forme de la boîte. Une valeur proche de zéro permettrait de découpler le spin du trou du champ nucléaire pour obtenir des qbit très stables en phase condensée.

Nous retouvons les phénomènes de bistabilité en champ magnétique longitudinal de la polarisation nucléaire et électronique présents dans les boîtes d'InGaAs pour le trion positivement chargé, mais pas pour celui négativement chargé.

Des mesures du rapport des constantes hyperfines à plus faible champ magnétique appliqué, en particulier pour détecter le saut du rapport des constantes hyperfines en photoluminescence résonante, permettraient de confirmer le modèle présenté ici.

Des études en champ magnétique incliné pour tester la bistabilité en fonction de l'angle entre les plans de l'échantillon et le plan défini par le champ magnétique pourraient ouvrir la voie à des expériences de résonance magnétique nucléaire tout optique.

6 Conclusion : bilan et perspectives

Les études sur les boîtes de GaAs (111) produites par épitaxie à partir de gouttelettes métalliques insérées dans des dispositifs à contrôle de la charge ont permis la séparation de différents complexes excitoniques allant de X^{2+} à X^{4-} . Les deux trions chauds ainsi que des biexcitons chargés ont aussi été observés. L'échange coulombien, déterminant la structure fine du complexe à champ nul, est déterminé essentiellement par le nombre de charges présentes dans le complexe et leur configuration électronique. En revanche, il dépend peu de la tension.

L'étude de la structure fine à champ magnétique nul ainsi que l'étude de l'évolution du nombre de transitions optiques de chaque complexe avec l'application d'un champ magnétique longitudinal permet de lever toute ambiguïté sur leur identification. La modélisation des trions chauds X^{+*} et X^{-*} permet aussi de déduire une estimation des facteurs gyromagnétiques des électrons et des trous sur les orbitales *p*. Les contributions diamagnétiques au décalage en énergie des transitions sous champ magnétique longitudinal n'ont été introduites que de façon phénoménologique. Une nouvelle étape dans la compréhension du comportement en champ magnétique pourrait être l'étude des effets diamagnétiques non paraboliques ainsi que ceux qui se manifestent par un décalage vers les faibles énergies pour certaines transitions.

Suite à la séparation et à l'identification des complexes, les couplages entre spins des porteurs et des noyaux ont été étudiés. Grâce aux règles de sélection des transitions optiques des boîtes (111), nous avons pu mesurer le décalage Overhauser pour les trous et les électrons pour les trions X^+ et X^- . Pour X^+ , un rapport des constantes hyperfines effectives du trou et de l'électron est mesuré autour de 0,2. Pour X^- , une variabilité importante du rapport de 0,1 à 1 est constatée. Ce rapport dépend du champ magnétique appliqué ainsi que des tenseurs de Landé des trous : le rapport peut donc éventuellement changer de signe. Des études du décalage Overhauser des trous et des électrons à plus faible champ magnétique (mesuré en fluorescence résonante pour diminuer la largeur des transitions) permettraient de vérifier la dépendance du rapport des constantes hyperfines en fonction du tenseur de Landé du trou. Des études de l'arsenic et des deux isotopes du gallium permettraient aussi de préciser les constantes hyperfines du trou pour chaque élément.

Par ailleurs, nous avons observé la bistabilité conjointe de la polarisation nucléaire et électronique pour X⁺ comme pour les boîtes d'InGaAs. Contrairement à ces dernières, la polarisation nucléaire augmente très rapidement à faible champ puis atteint une valeur limite. L'effondrement de la polarisation nucléaire a toujours lieu lorsque le champ magnétique externe est opposé au champ magnétique nucléaire perçu par l'électron ce qui suggère que c'est l'électron qui crée la polarisation dynamique des noyaux. Par contre pour X⁻, nous n'observons pas un champ critique d'effondrement de la polarisation nucléaire mais une diminution progressive de celle-ci.

Des premiers tests d'effet Hanle incliné montrent une bistabilité uniquement de la polarisation électronique pour un angle de 45° ainsi qu'une bistabilité en champ magnétique des polarisations électroniques et nucléaires pour un angle hors du plan de 22,5°.

Les mesures des polarisations électroniques et nucléaires en fonction de l'angle d'inclinaison du champ magnétique appliqué ouvrent une voie pour la réalisation d'une expérience de RMN tout optique, d'une détection toute-optique de la résonance magnétique nucléaire en champ magnétique oblique. L'idée générale de ce projet est la suivante : nous nous plaçons en champ magnétique appliqué oblique et nous modulons l'intensité du faisceau laser d'excitation à une fréquence variable. Ce type d'expérience à été réalisé pour du GaAs massif (Kalevich 1986) ainsi que pour des puits quantiques (Salis et al 2001, Eickoff et al 2002)

Le champ Knight créé par l'électron peut être décomposé en deux composantes. L'une parallèle au champ externe appliqué permettant de construire une polarisation nucléaire dynamique significative suivant cet axe hors des fréquences de résonance des noyaux. L'autre, orthogonale au champ appliqué aura une composante oscillante qui devra jouer le rôle du champ tournant dans une expérience de RMN classique. Nous avons vu que le champ Knight peut atteindre des valeurs significatives dans les boîtes quantiques de GaAs (Sallen et al 2014) nettement supérieures au champ local. Lorsque la fréquence de modulation de cette composante n'est pas résonante avec le clivage entre niveaux nucléaires induit par le champ magnétique total qu'ils perçoivent, nous pourrons mesurer un clivage spectral sur le spectre de X⁺, résultant de l'effet Zeeman et Overhauser sur l'électron et le trou. Lorsque la fréquence de modulation est réglée à la résonance avec le clivage total en énergie sur un isotope donné, nous aurons une baisse de l'effet Overhauser global sur l'électron de X⁺, se traduisant par une baisse du clivage dans le spectre d'émission. Nous devrions en principe, accéder ainsi aux différentes fréquences de résonance nucléaires à un champ externe donné et pour une puissance d'excitation donnée.

Une première étape de ce projet consiste à effectuer des mesures permettant de caractériser et de modéliser l'effet Hanle nucléaire en champ oblique en fonction de l'angle du champ appliqué par rapport à la normale à l'échantillon (également l'axe optique), en mettant à profit notre bobine vectorielle (voir Figure 101). Nous observons une réponse asymétrique du taux de polarisation électronique de l'électron de X^+ , présentant un pic central et un maximum secondaire quasiment aussi intense.

La modélisation de l'effet Hanle réalisée précédemment (Sallen et al 2013), valable pour les petits angles hors plan, néglige la composante du spin électronique perpendiculaire au plan défini par le champ magnétique appliqué et l'axe optique. Cette approximation n'est plus possible dans le cas où le champ magnétique est appliqué avec un angle hors du plan important. Un effort de modélisation de l'effet Hanle pour un angle du champ magnétique quelconque sera donc nécessaire.



Figure 101 : Polarisation circulaire pour X⁺ en fonction du champ magnétique appliqué avec un angle dans le plan φ =60° et avec un angle depuis l'axe z variant de 45 à 130° par incrément de 5° effectué en deux campagnes d'expériences (les deux courbes Or représentent le rattachement de ces campagnes pour θ =80°). Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité et l'axe des abscisses à été décalé de -10mT. Les rampes de champ magnétique ont été effectuées par valeurs croissantes pour QDD-avril2014.

Nous avons fait des tentatives de mesures sous excitation modulée en champ magnétique incliné en modulant l'intensité du laser He :Ne (voir Figure 102). Le laser He :Ne d'excitation à ainsi été modulé à 1MHz et nous avons vérifié que la polarisation dynamique des noyaux est possible avec une excitation modulée²⁸.



Figure 102 : Polarisation circulaire lors de rampes en champ magnétique croissantes pour un angle de 45° sans modulateur (rouge) ou avec une modulation à 1MHz (bleu) pour une puissance d'excitation de 40 μ W. Les courbes ont été corrigées du champ magnétique rémanent lors de la rampe (ici -10mT).

Des premiers essais de RMN tout optique ont été tentés dans cette voie, mais les conditions optimales de détection n'ont pas encore pu être déterminées.

Les étapes principales à effectuer pour réaliser une expérience de RMN toute optique sont :

• trouver la configuration (valeur et angle du champ magnétique, puissance d'excitation, fréquence de modulation) dans laquelle la modulation du champ Knight est suffisante pour dépolariser sélectivement un élément donné. Cette configuration doit aussi permettre de détecter cette dépolarisation : la polarisation dynamique nucléaire doit être suffisante.

• l'effet Hanle est très sensible (en particulier à l'intensité d'excitation du laser), l'ensemble expérimental doit être suffisamment stable pour ne pas faire basculer la polarisation nucléaire sous l'effet des fluctuations de l'intensité d'excitation.

²⁸ La forme de la courbe Hanle est semblable. Les différences entre les valeurs de polarisation circulaire avec ou sans modulation viennent probablement d'un changement de l'alignement du microscope. En effet les fibres optiques du modulateur ont une ouverture numérique différente des fibres habituellement utilisées (0,16 pour le modulateur contre 0,12 pour les fibres classique). Nous ne pouvons donc pas comparer directement les puissances focalisées avec la même lentille.

7 Annexe : Calcul de l'échange coulombien pour trois électrons

Rappelons l'équation (8) du manuscrit :

$$H_{ex}^{pps} = D^{pp} + 2D^{ps} - E^{pp} \left(J^{pp^2} - 1 \right) - E^{ps} \left(1 + J_z^{pp} S_z^s + J_+^{pp} S_-^s + J_-^{pp} S_+^s \right)$$
(88)

En se plaçant dans une base construite avec les états d'électron p dans la base où là matrice est diagonale (4 états $T_{+1}^{pp}, T_{-1}^{pp}, S_0^{pp}$) et en y ajoutant un électron s (2 états \uparrow_s, \downarrow_s), nous obtenons dans la base

Avec $\tilde{D} = D^{pp'} + 2D^{ps}$, $D^{ij}(E^{ij})$ le terme direct (d'échange) coulombien entre les deux particules *i* et *j*. Nous considérons les échanges entre l'électron *s* et les électrons *p* ou *p*' comme égaux.

La matrice est diagonale pour les états singulets et pour les états avec les trois spins alignés :

 $\begin{array}{l} \text{Les états } \left|S_{0}^{pp},\uparrow_{s}\right\rangle \text{et } \left|S_{0}^{pp},\downarrow_{s}\right\rangle \text{ d'énergie propre } \widetilde{D}+E^{pp'}-E^{ps} \text{ et } \text{ d'états de spin} \\ \left|\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \text{ et } \left|\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle. \\ \text{Les états } \left|T_{+1}^{pp},\uparrow_{s}\right\rangle \text{ et } \left|T_{-1}^{pp},\downarrow_{s}\right\rangle \text{ d'énergie propre } \widetilde{D}-E^{pp'}-2E^{ps} \text{ et } \text{ d'états de spin} \\ \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \text{ et } \left|\frac{3}{2},-\frac{3}{2}\right\rangle \\ \text{Les états } \left|T_{+1}^{pp},\downarrow_{s}\right\rangle \text{ et } \left|T_{0}^{pp},\uparrow_{s}\right\rangle \text{ correspondent au bloc dans la} \\ \text{base } \left\{T_{+1}^{pp},\downarrow_{s}\right\}, \left|T_{0}^{pp},\uparrow_{s}\right\rangle\right\}: \end{array}$

$$\begin{pmatrix} \widetilde{\mathbf{D}} - \mathbf{E}^{pp} & -\sqrt{2}\mathbf{E}^{ps} \\ -\sqrt{2}\mathbf{E}^{ps} & \widetilde{\mathbf{D}} - \mathbf{E}^{pp} - \mathbf{E}^{ps} \end{pmatrix}$$
(90)

Les énergies propres de cette matrice sont $\tilde{D} - E^{pp} - 2E^{ps}$ et $\tilde{D} - E^{pp} + E^{ps}$. Nous cherchons maintenant les vecteurs propres associés à ces énergies propres.

Pour $\widetilde{D} - E^{pp} - 2E^{ps}$ nous avons comme vecteur propre normalisé $\psi^{+} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(1 \Big| T^{pp}_{+1}, \downarrow_{s} \Big\rangle + \sqrt{2} \Big| T^{pp}_{0}, \uparrow_{s} \Big\rangle \right)$ qui a comme état de spin $\Big| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \Big\rangle$.

Pour $\widetilde{D} - E^{pp} + E^{ps}$ nous avons comme vecteur propre normalisé $\psi^{-} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(\sqrt{2} \left| T^{pp}_{+1}, \downarrow_{s} \right\rangle - 1 \left| T^{pp}_{0}, \uparrow_{s} \right\rangle \right)$ qui a comme état de spin $\left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle$.

• Les états $|T_{-1}^{pp},\uparrow_s\rangle$ et $|T_0^{pp},\downarrow_s\rangle$ correspondent au bloc dans la base $\{T_0^{pp},\downarrow_s\rangle,|T_{-1}^{pp},\uparrow_s\rangle\}$:

$$\begin{pmatrix} \widetilde{\mathbf{D}} - \mathbf{E}^{pp} - \mathbf{E}^{ps} & -\sqrt{2}\mathbf{E}^{ps} \\ -\sqrt{2}\mathbf{E}^{ps} & \widetilde{\mathbf{D}} - \mathbf{E}^{pp} \end{pmatrix}$$
(91)

Les énergies propres de cette matrice sont $\tilde{D} - E^{pp} - 2E^{ps}$ et $\tilde{D} - E^{pp} + E^{ps}$

 $\tilde{D} - E^{pp} - 2E^{ps}$ Pour nous comme vecteur normalisé avons propre $\psi^{+*} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(\sqrt{2} \left| T_0^{pp}, \downarrow_s \right\rangle + 1 \left| T_{-1}^{pp}, \uparrow_s \right\rangle \right) \text{ qui a comme état de spin } \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle.$ $\tilde{D} - E^{pp} + E^{ps}$ Pour nous normalisé avons comme vecteur propre

$$\psi^{-*} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(1 \left| T_0^{pp}, \downarrow_s \right\rangle - \sqrt{2} \left| T_{-1}^{pp}, \uparrow_s \right\rangle \right) \text{ qui a comme état de spin } \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle.$$

Nous pouvons noter que les états $\psi^{+(-)}$ et $\psi^{+(-)*}$ se correspondent par renversement du temps. Pour résumer nous avons donc trois énergies propres :

• Un quadruplet à l'énergie
$$\tilde{D} - E^{pp} - 2E^{ps}$$
 avec les états $|T_{+1}^{pp}, \uparrow_s\rangle, |T_{-1}^{pp}, \downarrow_s\rangle, \psi^+$ et ψ^{+*} .

- Un doublet à l'énergie $\tilde{D} E^{pp} + E^{ps}$ avec les états ψ^- et ψ^{-*} .
- Un doublet à l'énergie $\widetilde{D} + E^{pp} E^{ps}$ avec les états $|S_0^{pp}, \uparrow_s\rangle$ et $|S_0^{pp}, \downarrow_s\rangle$.

8 Annexe : Calcul du décalage Zeeman et Overhauser pour les trous

8.1 Décalage Zeeman

Le décalage Zeeman pur (sans champ nucléaire) pour les trous est donné par l'Hamiltonien :

$$H_{h}^{z} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1} & g_{h2} \\ g_{h2} & -g_{h1} \end{pmatrix}$$
(92)

Nous définissons $|h+\rangle$ comme étant l'état de trou correspondant à $\left|\frac{3}{2}\right\rangle$ pour g_{h2}=0, c'est-à-dire

 $|\mathbf{h}+\rangle = \alpha_1 \left|\frac{3}{2}\right\rangle + \alpha_2 \left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ et donc $|\mathbf{h}-\rangle = \alpha_2 \left|\frac{3}{2}\right\rangle - \alpha_1 \left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ pour $g_{h1} > 0$ avec les valeurs de α_1 et

 α_2 définies par les équations (93)-(94). Pour $g_{h1} < 0$, nous obtenons $|h+\rangle = \alpha_2 \left|\frac{3}{2}\right\rangle - \alpha_1 \left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ et

 $|\mathbf{h}-\rangle = \alpha_1 \left|\frac{3}{2}\right\rangle + \alpha_2 \left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ (avec α_1 et α_2 sont les coefficients C_1 et C_2 de la référence Durnev 2014) :

$$\alpha_{1} = \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \frac{g_{h1}}{g_{h}} \right)}$$
(93)

$$\alpha_2 = \operatorname{Sgn}\left(g_{h2}\right) \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 - \frac{g_{h1}}{g_h}\right)} \tag{94}$$

Nous pouvons maintenant appliquer l'Hamiltonien H_h^z à l'état $|h+\rangle$ et $|h-\rangle$ dans le cas $g_{h1}>0$.

Dans la base $\left\{ \left| \frac{3}{2} \right\rangle, \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$:

$$H_{h}^{z} \begin{pmatrix} \alpha_{1} \\ \alpha_{2} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1} & g_{h2} \\ g_{h2} & -g_{h1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_{1} \\ \alpha_{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3/2 \\ -3/2 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1}\alpha_{1} + g_{h2}\alpha_{2} \\ g_{h2}\alpha_{1} - g_{h1}\alpha_{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3/2 \\ -3/2 \end{pmatrix}$$

$$H_{h}^{z} \begin{pmatrix} \alpha_{1} \\ \alpha_{2} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} g_{h} \begin{pmatrix} \alpha_{1} \\ \alpha_{2} \end{pmatrix}$$

$$H_{h}^{z} \begin{pmatrix} \alpha_{2} \\ -\alpha_{1} \end{pmatrix} = -\frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} g_{h} \begin{pmatrix} \alpha_{2} \\ -\alpha_{1} \end{pmatrix}$$
(95)

Le décalage Zeeman entre l'état $|h+\rangle$ et l'état $|h-\rangle$ pour $g_{h1}>0$ est égal à :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm z} = g_{\rm h} \mu_{\rm B} B_{\rm z} \tag{96}$$

Le fait de prendre $g_{h1}<0$ inverse les états $|h+\rangle$ et $|h-\rangle$, donc dans le cas $g_{h1}<0$ le décalage Zeeman entre l'état $|h+\rangle$ et l'état $|h-\rangle$ est égal à :

$$\Delta_{\mathbf{h}}^{\mathbf{z}} = -\mathbf{g}_{\mathbf{h}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{B}} \mathbf{B}_{\mathbf{z}} \tag{97}$$

Pour résumer, le décalage Zeeman entre l'état $|h+\rangle$ et l'état $|h-\rangle$ est donné par :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm z} = \operatorname{Sgn}\left(g_{\rm h1}\right)g_{\rm h}\mu_{\rm B}B_{\rm z} \tag{98}$$

8.2 Décalage Overhauser pur

Le décalage Overhauser pur (sans champ magnétique appliqué) pour les trous est donné par l'Hamiltonien :

$$\mathbf{H}_{\mathrm{h}}^{\mathrm{OHS}} = \frac{1}{2} \langle \mathbf{I}_{\mathrm{z}} \rangle \begin{pmatrix} \mathbf{C}_{1} & \mathbf{C}_{2} \\ \mathbf{C}_{2} & -\mathbf{C}_{1} \end{pmatrix}$$
(99)

où $\left< I_z \right>$ est le moment angulaire moyen des noyaux de la boîte.

Un calcul analogue à celui de la section 8.1 conduit à une valeur de décalage Overhauser donnée par :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm OHS} = \operatorname{Sgn}\left({\rm C}_{1}\right) \sqrt{{\rm C}_{1}^{2} + {\rm C}_{2}^{2}} \left\langle {\rm I}_{\rm z} \right\rangle \tag{100}$$

Nous pouvons alors définir *C*, en analogie avec le coefficient Zeeman g_h par $C = \sqrt{C_1^2 + C_2^2}$.

8.3 Effet combiné des décalages Zeeman et Overhauser

L'hamiltonien total effectif exprimant l'effet Zeeman et Overhauser s'écrit d'après ce qui précède :

$$H_{h}^{tot} = \frac{1}{2} \langle I_{z} \rangle \begin{pmatrix} C_{1} & C_{2} \\ C_{2} & -C_{1} \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \mu_{B} B_{z} \begin{pmatrix} g_{h1} & g_{h2} \\ g_{h2} & -g_{h1} \end{pmatrix}$$
(101)

Le clivage en énergie des états $|h+\rangle$ et $|h-\rangle$ est alors donné par l'expression :

$$\Delta_{\rm h}^{\rm tot} = \operatorname{Sgn}\left(C_1 \langle I_z \rangle + g_{\rm h1} \mu_{\rm B} B_z \right) \sqrt{\left(g_{\rm h1} \mu_{\rm B} B_z + C_1 \langle I_z \rangle\right)^2 + \left(g_{\rm h2} \mu_{\rm B} B_z + C_2 \langle I_z \rangle\right)^2}$$
(102)

8.4 Extraction du décalage Overhauser à champ magnétique non nul

Pour extraire le décalage Overhauser du décalage total, nous soustrayons le décalage Zeeman pur à ce dernier :

$$\Delta_{h}^{OHS} = \operatorname{Sgn}\left(C_{1}\langle I_{z}\rangle + g_{hl}\mu_{B}B_{z}\rangle / (g_{hl}\mu_{B}B_{z} + C_{1}\langle I_{z}\rangle)^{2} + (g_{h2}\mu_{B}B_{z} + C_{2}\langle I_{z}\rangle)^{2} - \operatorname{Sgn}\left(g_{h1}\right)g_{h}\mu_{B}B_{z}$$

$$(103)$$

L'équation (103) a deux cas limites :

• Le premier cas limite lorsque le champ nucléaire est plus important que le champ magnétique appliqué i.e. $|C\langle I_z\rangle| >> |g_h\mu_B B_z|$ qui est équivalent au cas traité en Annexe 8.2. Alors :

$$\Delta_{h}^{OHS} = \text{Sgn}(C_{1})C\langle I_{z} \rangle$$

$$C_{\text{eff}} = \text{Sgn}(C_{1})C$$
(104)

• Le deuxième cas limite est obtenu à fort champ appliqué i.e. $g_h \mu_B B_z >> C \langle I_z \rangle$, en ne gardant que les termes du premier ordre en $\langle I_z \rangle$ dans la racine carrée puis en effectuant un développement limité au premier ordre par rapport à $C \langle I_z \rangle / g_h \mu_B B_z$ nous obtenons :

$$\Delta_{h}^{OHS} = \operatorname{Sgn} \left(gh_{1} \right) \left(\frac{g_{h1}}{g_{h}} C_{1} + \frac{g_{h2}}{g_{h}} C_{2} \right) \langle I_{z} \rangle$$

$$C_{eff} = \operatorname{Sgn} \left(gh_{1} \right) \left(\frac{g_{h1}}{g_{h}} C_{1} + \frac{g_{h2}}{g_{h}} C_{2} \right)$$
(105)

Dans la partie intermédiaire où les valeurs de ces deux termes sont équivalentes nous avons C_{eff} défini comme étant $\frac{\Delta_h^{OHS}}{\langle I_z \rangle}$ nous obtenons :

$$C_{\text{eff}} = \text{Sgn}\left(C_{1}\langle I_{z}\rangle + g_{hl}\mu_{B}B_{z}\right)\sqrt{\left(\frac{g_{hl}\mu_{B}B_{z} + C_{1}\langle I_{z}\rangle}{\langle I_{z}\rangle}\right)^{2} + \left(\frac{g_{h2}\mu_{B}B_{z} + C_{2}\langle I_{z}\rangle}{\langle I_{z}\rangle}\right)^{2}} - \text{Sgn}\left(g_{h1}\right)\frac{g_{h}\mu_{B}B_{z}}{\langle I_{z}\rangle}$$
(106)

Nous pouvons remarquer que cette quantité est discontinue au point où le signe de $C_1 \big\langle I_z \big\rangle + g_{hl} \mu_B B_z \, change.$

9 Annexe : Magnéto-spectroscopie des transitions électron p-trou s

Des études magnéto-spectroscopiques réalisées en photoluminescence ou en excitation de la photoluminescence (PLE) ont révélé l'existence de transitions situées 25 à 40 meV au dessus des transitions entre états s d'électron et de trou. Ces raies peuvent a priori être attribuées soit à l'absorption résonante sur des niveaux excités de complexes excitoniques, soit à des processus d'absorption assistée par émission de phonon optique. Ces dernières études ont confirmé que ces états appartenaient bien à la même boîte quantique (voir section 3.2.3.4.2). En corrélant, l'émission des complexes excités avec celle des excitons neutres ou chargés dans leur états fondamentaux, nous avons pu ainsi identifier les boîtes dont provenaient les différentes transitions optiques.

9.1 Photoluminescence

Nous allons commencer par présenter les résultats de photoluminescence des différents états excités de X^0 à X^{3-} . Puis nous nous focaliserons sur la tension pour laquelle X^{2-} prédomine (l'électron p est stable dans l'état initial de ce complexe). Puis en associant les études en photoluminescence et en PLE sur X^- , nous nous concentrerons sur les transitions électron p trou s.

Les transitions situées environ 25meV au dessus des transitions principales observées au Chapitre 3, ont dans un premier temps été étudiées en photoluminescence. Nous allons principalement nous intéresser à QDP-Feb2014. Commençons par rappeler le comportement en champ électrique (voir Figure 103). Il y a une « forêt » de raies à 25 meV environ au dessus des transitions principales. Nous observons des sauts en énergie (i.e. en états de charge) aux mêmes tensions que les transitions principales ce qui prouve que les transitions à haute énergie proviennent de la même boîte. Comme l'écart avec les transitions de type électron *s*-trou *s* est inférieur au phonon optique, nous postulerons qu'il s'agit de transitions faiblement autorisées entre électrons *p* et trous *s* (ce qui est compatible avec nos estimations de l'énergie de confinement des électrons dans un modèle de potentiel de confinement harmonique). Nous allons donc utiliser la magnéto-spectroscopie pour confirmer cette interprétation.


Figure 103 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-Feb2014 en fonction du champ électrique appliqué avec le réseau 1200 traits/mm au premier ordre pour une puissance d'excitation d'environ 10μ W. Bleu<0 coups, rouge >4750 coups. Les lignes blanches sont des guides pour les yeux matérialisant les champs électriques auxquelles l'état de charge des transitions principales change. Les lignes pointillées oranges indiquent pour quelles valeurs de champ électrique les études magnéto-spectroscopiques ont été réalisées.

Les études magnéto-spectroscopiques ont été réalisées à différentes puissances d'excitation. A faible puissance, un nombre plus faible de raies sont visibles, ce qui permet une meilleure séparation des transitions les plus intenses (voir Figure 104 panneaux du bas). A forte puissance, d'autres raies spectrales apparaissent, ce qui permet d'observer des types de transitions moins intenses ou moins probables voir Figure 104 panneaux du haut.



Figure 104 : Cartographie d'intensité d'émission des états excités 25 meV au dessus des transitions principales en fonction du champ magnétique pour différentes tensions appliquées correspondant à (de gauche à droite) X^+ , X^0 , X^- , X^{2-} , X^{3-} pour QDP-Feb2014 à haute puissance (haut) et basse puissance (bas).

Nous faisons tout d'abord les constatations expérimentales suivantes :

• les transitions observées présentent des décalages diamagnétiques importants, caractérisés par des coefficients empiriques situés entre -35 et -50 μ eV.T⁻² pour les transitions se décalant quadratiquement vers les basses énergies, et entre 70 et 90 μ eV.T⁻² pour les transitions se décalant quadratiquement vers les hautes énergies (contre environ 10 μ eV. T⁻² pour les transitions fondamentales de X⁻).

De façon remarquable, certaines transitions ont donc un coefficient diamagnétique effectif négatif (dont les plus brillantes en Figure 104) et l'énergie de la transition diminue avec le champ magnétique appliqué. Ceci signifie que le décalage diamagnétique de l'état final est supérieur à celui de l'état initial. Ce fait est surprenant, en comparant pour X^{2-} , les processus de recombinaison d'un électron p avec un trou s et d'un électron s avec un trou s, nous obtenons respectivement un singulet d'électrons dans le premier cas, et une paire (s-p) dans le deuxième. Nous pourrions penser que le shift diamagnétique du singulet (s-s) est plus faible que celui de la paire (s-p). L'effet contraire est observé, ce qui semble contre-intuitif. Notons cependant que l'état final le plus probable dans la transition (s-p) est l'état triplet de spin, état qui minimise la répulsion coulombienne entre les deux électrons.

• Une autre observation intéressante est le nombre de raies présentes. Les états de trous légers (appartenant à la représentation Γ_4) n'étant pas couplés par le champ magnétique, nous

nous attendrions à un nombre de raies plus faibles pour la recombinaison impliquant maintenant des trous légers à la place des trous lourds (deux transitions sont attendues pour la recombinaison (e_1 - lh_1) du trion négativement chargé X²⁻ (par exemple).

Nous allons maintenant détailler la luminescence des transitions excités émettant à la tension où X^{2-} (V=0,35V) est présent (voir Figure 105).

Les transitions peuvent être séparées en plusieurs groupes. Un premier groupe de transitions caractérisées par des coefficients diamagnétiques positifs. Ce groupe est situé à haute énergie et présente un nombre de raies n'augmentant pas avec le champ magnétique appliqué. De ce fait, ces transitions ont donc le comportement attendu en magnéto-spectroscopie pour des transitions électron $p \rightarrow$ trous légers.

Le deuxième groupe de transitions, plus brillantes, est situé à plus basse énergie et présente une structure fine plus complexe en champ magnétique. Ces transitions ont un comportement magnétique de trou lourd même si la transition est permise grâce au mélange avec des trous légers (voir Figure 108 et section 1.3.1.2).



Figure 105 : Cartographie d'intensité d'émission des états excités 25 meV au dessus des transitions principales en fonction du champ magnétique pour une tension appliquée correspondant à X^{2-} pour QDP-Feb2014 avec une excitation dans la barrière.

Pour compléter ces études de magnéto-spectroscopie, des études de spectroscopie d'excitation de la luminescence sous champ magnétique ont été conduites (magnéto-PLE).

9.2 Spectroscopie d'excitation de la photoluminescence sous champ magnétique

L'évolution de certaines des résonances les plus brillantes a été étudiée en fonction du champ magnétique appliqué pour permettre une identification grâce aux règles de sélection optique en absorption.

Les premières études ont été réalisées sur QDU-oct2014 où les deux résonances les plus intenses ont été suivies en champ magnétique variable. Une troisième résonance apparaît de plus au dessus de 4T (voir Figure 106).



Figure 106 : PLE de X⁻ à 0,51V et 50 μ W d'excitation pour différents champs magnétiques appliqués. La polarisation de l'excitation est soit σ^+ (rouge) soit σ^- (noir), l'intensité est la somme des deux polarisations circulaires détectées. Les lignes vertes matérialisent l'énergie de la résonance à champ nul (ou à 4T pour la résonance apparaissant à ce champ magnétique).

Avec l'application d'un champ magnétique, les états de trou se mélangeant, la polarisation de la photoluminescence est limitée. Pour les résonances étudiées, la polarisation de la lumière émise est toujours inférieure à 20%, c'est pourquoi nous sommons l'intensité émise dans les deux polarisations pour ne présenter que l'intensité totale émise.

L'évolution des résonances en intensité issues de transitions optiques résultent du décalage Zeeman et diamagnétique de l'état final moins celui de l'état initial.

La différence de comportement magnétique entre les transitions issues de X^* (transitions e_1 hh_1 et e_2 - hh_1) viennent de leur état final différent. Du comportement magnétique très différent entre un électron s (e_1) et un électron p (e_2).

Le doublet apparaissant à plus faible énergie (vers 1,740-1,745eV) est constitué de deux composantes de polarisations opposées et suit des règles de sélection optique très pures (nous mesurons plutôt ici la précision de la calibration de la lame à cristaux liquides d'excitation que la pureté des règles de sélection optique). Intéressons nous plus précisément à ces transitions, l'évolution du doublet a été suivi en champ magnétique pour les deux polarisations d'excitation (voir Figure 107). Nous ferons l'hypothèse que ces transitions sont les transitions entre e_2 et hh_1 . Ces transitions sont en principe interdites. Cependant, le mélange entre les états hh_1 avec les trous légers lh_2 (qui peut être relativement important voir Luo et al 2015) les autorise.



Figure 107 : PLE de X⁻ pour une tension appliquée de 0,51V et une puissance d'excitation de 50 μ W pour différents champs magnétiques appliqués pour le doublet le plus brillant. La polarisation de l'excitation est soit σ^+ (rouge) soit σ^- (noir), l'intensité est la somme de l'intensité des deux polarisations circulaires détectées (non normalisées). Nous pouvons noter la pureté des règles de sélection optique en absorption.

Cette séparation en énergie reflète le clivage entre deux états avec des règles de sélection optiques opposées. Etudions les règles de sélection pour les transitions d'un trou lourd sur une

orbitale *s* (*hh*₁) (via le mélange avec les trous légers sur une orbitale *p lh*₂) vers un électron sur une orbitale *p* (e_2).

Il y a quatre états lh_2 avant mélange, deux de pseudo-spin $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle$:

$$\left| p_{+}^{v}, \frac{X - iY}{\sqrt{2}} \uparrow \right\rangle \leftrightarrow \left| p_{+}^{v}, -\frac{1}{2} \right\rangle$$

$$\left| p_{-}^{v}, -\left(\frac{X + iY}{\sqrt{2}}\right) \downarrow \right\rangle \leftrightarrow \left| p_{-}^{v}, +\frac{1}{2} \right\rangle$$

$$(107)$$

Avec p_{\pm}^{v} , la fonction enveloppe de la bande de valence du niveau lh_2 et $\left|\frac{X-iY}{\sqrt{2}}\uparrow\right\rangle$, la

fonction de Bloch du trou léger que nous nommerons par son pseudo spin $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle$. Les deux

autres états ont un pseudo-spin $\left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle$:

$$\left| p_{+}^{v}, -\left(\frac{X+iY}{\sqrt{2}}\right) \downarrow \right\rangle \leftrightarrow \left| p_{+}^{v}, \frac{3}{2} \right\rangle$$

$$\left| p_{-}^{v}, \frac{X-iY}{\sqrt{2}} \uparrow \right\rangle \leftrightarrow \left| p_{-}^{v}, -\frac{3}{2} \right\rangle$$

$$(108)$$

Les états finaux e_2 sont aussi au nombre de quatre avec des pseudo-spins $\left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ ou $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle$:

$$\begin{vmatrix} p_{+}^{c}, \uparrow \rangle & J_{z} = 3/2 \\ \begin{vmatrix} p_{-}^{c}, \downarrow \rangle & J_{z} = -3/2 \\ \begin{vmatrix} p_{+}^{c}, \downarrow \rangle & J_{z} = 1/2 \\ \end{vmatrix}$$

$$(109)$$

$$\begin{vmatrix} p_{-}^{c}, \uparrow \rangle & J_{z} = -1/2$$

L'amplitude des transitions optiques est proportionnelle au recouvrement des fonctions enveloppes (il faut donc des fonctions enveloppes de même parité) et la conservation du spin, ce qui nous donne en combinant les équations (107) et (108) avec l'équation (109) :

$$\begin{vmatrix} p_{+}^{v}, \frac{1}{2} \rangle \xrightarrow{\sigma^{+}} | p_{+}^{c}, \uparrow \rangle \\ \begin{vmatrix} p_{-}^{v}, -\frac{1}{2} \rangle \xrightarrow{\sigma^{-}} | p_{-}^{c}, \downarrow \rangle \\ \end{vmatrix}$$

$$\begin{vmatrix} p_{+}^{v}, \frac{3}{2} \rangle \xrightarrow{\sigma^{-}} | p_{+}^{c}, \downarrow \rangle$$

$$(110)$$

$$\left|p_{-}^{v},-\frac{3}{2}\right\rangle \xrightarrow{\sigma^{+}} \left|p_{-}^{c},\uparrow\right\rangle$$

Il y a donc quatre transitions possibles entre lh_2 et e_2 . Les transitions entre hh_1 et e_2 sont autorisées du fait du mélange entre les états de lh_2 et les états de hh_1 . En utilisant l'Hamiltonien de Luttinger dans l'approximation sphérique, nous obtenons la formulation générale des états mélangés entre les trous légers et les trous lourds :

$$\left|hh_{+}\right\rangle = \left|s^{v}, -\left(\frac{X+iY}{\sqrt{2}}\right)\uparrow\right\rangle + \alpha\left|p_{+}^{v}, -\left(\frac{X+iY}{\sqrt{2}}\right)\downarrow\right\rangle + \beta\left|p_{-}^{v}, \left(\frac{X-iY}{\sqrt{2}}\right)\uparrow\right\rangle$$

$$\left|hh_{-}\right\rangle = \left|s^{v}, \left(\frac{X-iY}{\sqrt{2}}\right)\downarrow\right\rangle - \alpha^{*}\left|p_{-}^{v}, \left(\frac{X-iY}{\sqrt{2}}\right)\uparrow\right\rangle + \beta^{*}\left|p_{+}^{v}, -\left(\frac{X+iY}{\sqrt{2}}\right)\downarrow\right\rangle$$

$$(111)$$

Avec $\alpha(\beta)$ le coefficient de couplage entre les trous lourds et les états de trou léger. Nous pouvons noter que les trous lourds se couplent uniquement avec les trous légers de pseudospin $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle$, ce qui nous amène donc à des règles de sélection optique avec quatre transitions dont la polarisation est directement reliée aux orbitales de conduction des états d'arrivée (voir Figure 108). Nous pouvons noter que les forces d'oscillateur cumulées pour chacune de ces deux polarisations sont égales à $|\alpha|^2 + |\beta|^2$. Le clivage en énergie entre les transitions de même polarisation est faible (de l'ordre de 0,5meV à 9T) ce qui explique que nous ne résolvions pas ce clivage. La forme asymétrique des pics de résonance pourrait provenir de ce clivage, l'addition de ces deux pics de résonance non résolue de forces d'oscillateur différentes pourrait rendre dissymétrique la raie d'absorption mesurée. Nous avons par contre des règles de sélection optiques strictes en polarisation entre p_+ et p_- . Le clivage mesuré entre les transitions est donc égal à :

$$E_{\text{clivage}} = g_e^{\text{eff}} \mu_B B_z = \left(2g_e^{\text{orb}} - g_e^{\text{spin}}\right) \mu_B B_z^{29}$$
(112)

²⁹ Nous considérons ici que la séparation vient d'une énergie moyenne entre les niveaux d'énergie des trous dont la séparation n'est pas résolue



Figure 108 : Règle de sélection optique pour une absorption entre les états hh_1 et e_2 . Les transitions polarisées $\sigma^{+(-)}$ sont indiquées en rouge (bleu). Les forces d'oscillateur sont notées entre parenthèses.

L'énergie moyenne du doublet d'absorption en champ magnétique varie de façon quadratique mais le clivage entre ces deux orbitales *p* augmente linéairement lorsque le champ magnétique augmente (voir Figure 109).



Figure 109 : Différence d'énergie entre les résonances en fonction de la polarisation circulaire d'excitation due à l'éffet Zeeman en fonction du champ magnétique, pour la résonance à basse énergie pour QDU-oct2014.

Ceci nous permet donc d'extraire un facteur de Landé effectif $g_e^{eff} = 4$ ce qui nous donne une valeur de $g_e^{orb} = 2,15$ en prenant $g_e^p = g_e^s = 0,3$ pour QDU-oct2014 et $g_e^{orb} = 1,85$ pour QDF-dec2014. Nous nous attendrions à une valeur de 1 dans le vide mais à cause de différents couplages en particulier avec des états *d*, cette valeur peut varier fortement (en analogie avec la valeur du facteur *g* du spin de l'électron sur un état *s*, très différente de la valeur du vide $g_0=2$).



Figure 110 : Cartographie de l'intensité d'émission p-s des états excités à 25meV des transitions les plus brillantes avec superposition des énergies des résonances étudiées en magnéto-optique (points verts). Les valeurs des raies d'absorption et de photoluminescence ont été placées à la même énergie à champ nul.

Nous trouvons un accord au moins partiel entre l'évolution en champ magnétique pour les études en photoluminescence des états à haute énergie et pour la PLE de ces mêmes états (voir Figure 110).³⁰

³⁰ La structure fine ne peut être résolue avec la résolution de notre expérience de PLE.

10 Annexe : Magnéto-spectroscopie des boîtes GaAs (111) en champ transverse ou incliné : Effet Hanle nucléaire

L'interaction entre les porteurs et les noyaux peut être étudiée en champ magnétique transverse ou incliné à travers l'effet Hanle nucléaire. La motivation générale de cette étude a été exposée dans le chapitre Conclusion : bilan et perspectives. Dans cette annexe, nous présentons les premiers résultats d'effet Hanle incliné en excitation non résonante puis des mesures d'effet Hanle transverse sous excitation quasi-résonante.

Les états de trou n'étant pas couplé par le champ magnétique transverse, son rôle dans l'effet Hanle (transverse) est donc négligeable. L'étude présentée ici a été effectuée sur un échantillon à boîte quantique GaAs sur un substrat orienté selon (111)A. Rappelons que le champ de contrainte dans ces boîtes est négligeable. Le dispositif utilisé ne permet pas le contrôle de la charge dans la boîte.

10.1 Excitation non résonante avec la tête forte puissance

Un des objectifs à terme est de développer une expérience de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) tout optique. Nous avons donc étudié l'effet Hanle sous excitation modulée. Pour cela nous avons utilisé une tête de microscope qui permet une plus forte puissance d'excitation (voir section 2.2.1.1). En effet les pertes d'insertion du modulateur optique (Jenoptik AM 635) étant de l'ordre de 7dB nous ne pouvions plus éclairer l'échantillon avec une puissance suffisante pour générer une polarisation dynamique de spin nucléaire. Nous commençons par nous intéresser aux comportements des boîtes sous forte puissance d'excitation, à des puissances inatteignables avec la tête de microscope classique.

10.1.1 Etude en puissance de l'intensité émise par X^+ et X^0

Avec cette nouvelle tête de microscope nous pouvons exciter l'échantillon avec une puissance allant jusqu'à environ 200μ W/ μ m² (20kW/cm²). L'augmentation de la puissance d'excitation

entraîne l'apparition d'un fond continu sur toute la largeur du spectre (voir Figure 111), ce fond continu est du même ordre de grandeur que le bruit de lecture de la caméra à transfert de charge pour des puissances d'excitation inférieures à $0.5\mu W/\mu m^2$.



Figure 111 : Spectre de photoluminescence de QDA-Juin2014 en fonction de la puissance d'excitation, le bruit de lecture de la caméra à transfert de charge (0,1 unité arb. ici) a été soustrait.

Ce fond continu complique les études en puissance, car il est plus difficile de déterminer précisément l'intensité émise par la boîte et l'intensité émise par ce fond continu. De plus l'intensité émise à l'énergie d'émission de la boîte diminue lorsque la puissance d'excitation augmente au delà de 10μ W (1kW/cm⁻²) que nous prenons ou pas en compte le fond continu (voir Figure 112). La plage de puissance d'excitation pour laquelle nous pouvons étudier les effets nucléaires est donc limitée à une plage de puissance allant de 1μ W/ μ m² (seuil d'apparition des effets nucléaires) à une puissance d'environ 50 μ W/ μ m².



Figure 112 : Intensité d'émission de X^+ (rouge) et X^0 (noir) sans correction (à gauche) ou en soustrayant le fond continu (à droite).

La diminution de l'intensité émise par les boîtes est liée à l'apparition d'un canal de recombinaison plus efficace que la capture par une boîte. A forte puissance les défauts dans la barrière (de faible qualité) peuvent être saturés, les recombinaisons bandes à bandes peuvent alors devenir plus efficaces que la capture d'une paire électron-trou par une boîte quantique. L'énergie d'émission de cette boîte se trouve dans la queue d'émission de la barrière d'AlGaAs (voir Figure 18). Une exaltation de l'effet Auger avec la puissance sur la plage 0,01 à 30µW d'excitation pourrait aussi expliquer ces baisses d'intensité d'émission.

Nous nous intéressons maintenant à la polarisation électronique et nucléaire que nous pouvons obtenir par excitation dans la barrière en fonction de la puissance d'excitation. La polarisation de l'électron, globalement stable en fonction de la puissance est comprise entre 30 et $40\%^{31}$, par contre le décalage Overhauser varie fortement avec la puissance d'excitation d'une valeur pratiquement nulle pour une puissance d'excitation inferieure à $1\mu W$ (ce que nous avons appeler faible puissance d'un point de vue des effets nucléaires) à environ $15\mu eV$ (soit une polarisation nucléaire de l'ordre de 10% à champ nul) pour une puissance d'environ $50\mu W$ (voir Figure 113).

 $^{^{31}}$ La chute de la polarisation électronique observée au delà d'une puissance de 100μ W pourrait être liée à un artefact dû à l'augmentation du fond continu. Cependant, nous constatons une chute de la polarisation dynamique des noyaux, ce qui infirme cette interprétation.



Figure 113 : Polarisation circulaire (gauche noir) et décalage Overhauser (droite bleu) en fonction de la puissance d'excitation pour QDA-juin2014 sous excitation dans la barrière à 1,759 eV.

10.2 Excitation non résonante

10.2.1 Effet Hanle anormal en champ transverse (Voigt)

Les études antérieures ont montré, dans ce type d'échantillon, l'orientation optique des spins électronique et nucléaire à faible champ transverse (Sallen et al 2014). L'effet Hanle sur X^+ présente une remontée de la polarisation de l'électron pour des champs transverses de l'ordre de la centaine de mT contre environ 1T pour les boîtes d'InGaAs contraintes (Krebs et al 2010) en présence de décalage Overhauser à champ nul (voir Figure 114).

Une calibration soigneuse en champ magnétique est nécessaire ici, car le magnéto-cryostat présente un léger effet d'hystérésis. Il y a donc un champ rémanent d'environ -5 (10)mT dans le sens de rampes croissantes et de +5(10)mT dans le sens décroissant.

Les mesures de clivage en énergie ont été réalisées dans une base circulaire qui n'est pas une base des états propres de X^+ en champ magnétique transverse (les transitions sont polarisées linéairement). Ceci peut expliquer la valeur nulle apparente du clivage total en énergie en champ transverse détectée en base circulaire.



Figure 114 : Polarisation circulaire (noir gauche) et décalage total (Overhauser + Zeeman) (bleu droite) pour X^+ pour QDD-avr2014. La rampe de champ magnétique a été effectuée par valeurs croissantes Les abscisses sont corrigées du champ rémanent (-5mT ici).

Nous pouvons observer que l'effet Hanle n'est pas tout à fait symétrique, ceci est certainement dû à une légère erreur d'alignement, induisant une composante B_z pour le champ magnétique appliqué.

De ce fait, la valeur de cette composante B_z va dépendre de l'orientation du champ magnétique dans le plan. Depuis le repère défini par les axes des bobines magnétiques, en effectuant une rotation d'angle φ_d du repère (*Oxyz*) autour de l'axe *z* pour que l'axe *x*' appartienne au plan de l'échantillon (*Ox'y'z'*) puis en effectuant une rotation d'angle θ_d autour de cet axe *x'* pour que l'axe *y''* appartienne aussi au plan de l'échantillon (*Ox'y''z''*), nous obtenons :

$$x'' = x \cos(\varphi_d) - y \sin(\varphi_d)$$
$$y'' = (x \cos(\varphi_d) + y \sin(\varphi_d)) \cos(\theta_d) - z \sin(\theta_d)$$
$$z'' = (x \cos(\varphi_d) + y \sin(\varphi_d)) \sin(\theta_d) + z \cos(\theta_d)$$
(113)

Pour avoir une courbe Hanle symétrique, nous voulons z''=0 pour z=0 et $\theta_d \neq 0[\pi]$. Ceci est obtenu pour un angle $\varphi = -\varphi_d [\pi]$ (depuis l'axe x). Nous observons que la courbe de polarisation circulaire en fonction du champ magnétique transverse n'est pas tout à fait invariante lorsque nous faisons varier l'angle φ du champ magnétique externe avec l'axe O_x de l'échantillon (voir Figure 115).



Figure 115 : Polarisation circulaire de X^+ en fonction du champ magnétique transverse appliqué pour différents angles de champ magnétique dans le plan pour QDD-Avr2014. Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité. Les rampes de champ magnétique ont été effectuées par valeurs croissantes. Les abscisses sont corrigées du champ rémanent (-10mT ici).

La courbe la plus symétrique est obtenue ici pour φ =60°. Les études suivantes seront donc conduites avec le champ magnétique appliqué suivant cet angle dans le plan. Nous pouvons noter que l'asymétrie liée à ce faible champ magnétique suivant *z* est bien plus importante pour les effets nucléaires et la polarisation électronique que pour le facteur *g* de l'électron.

Un petit angle suivant l'axe *z* permet donc de modifier la forme et la symétrie par rapport à un champ magnétique appliqué nul. Nous allons maintenant étudier l'effet Hanle nucléaire avec un champ magnétique hors du plan pour étudier systématiquement cette dissymétrie en fonction de l'angle d'inclinaison du champ.

10.2.2 Effet Hanle nucléaire sous champ magnétique incliné

Les études de l'effet Hanle sous champ magnétique hors du plan (composante longitudinale non nulle) ont été réalisées avec un angle de projection dans le plan de φ =60° pour avoir une forme symétrique pour l'inclinaison θ =90° (champ purement transverse). Puis les rampes de champs sont effectuées avec un angle θ variant de 45° à 130° (i.e. de plus ou moins 45° autour du plan *xy*) (voir Figure 116).



Figure 116 : Polarisation circulaire (haut) et décalage total entre les transitions émettant σ^+ et σ^- (OHS +Zeeman) (bas) pour X⁺ en fonction du champ magnétique appliqué avec un angle dans le plan φ =60° et avec un angle θ depuis l'axe z variant de 45 à 130° par incrément de 5° effectué en deux campagnes d'expérience (se recouvrant pour θ =80° voir accolades vert kaki) pour QDD-Avr2014. Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité et l'axe des abscisses à été corrigé du champ rémanent (ici -10mT). Les rampes de champ magnétique ont été effectuées par valeurs croissantes.

Le rebond de polarisation circulaire de l'électron correspond a un point de compensation entre les composantes du champ nucléaire et du champ magnétique appliqué ressenties par l'électron ($\vec{B}_{\perp}^{n} + \vec{B}_{\perp} \approx 0$). De façon remarquable, ici, nous avons la polarisation circulaire de l'électron qui remonte à une valeur comparable à celle à champ nul ($P_{circ}(B_{\perp}^{rebond}) \approx P_{circ}(0)$. A ce point la composante longitudinale du champ nucléaire prend des valeurs relativement importantes par rapport à celle obtenue à champ nul, comme on le voit sur la Figure 117.



Figure 117 : Projection du décalage total entre les transitions émettant σ^+ et σ^- sur l'axe z (en soustrayant le décalage Zeeman effectif pour les régions où B_n=0) pour différents angles θ inférieurs à 90° (à gauche) et supérieurs à 90° (à droite)³². L'axe des abscisses à été corrigé du champ rémanent (ici -10mT). Les rampes de champ magnétique ont été effectuées par valeurs croissantes.

Pour l'analyse de ces données se pose la question des paramètres physiques gouvernant les phénomènes. La dépolarisation du spin des électrons est-elle liée à la valeur algébrique du champ magnétique ou seulement à sa composante dans le plan ?

³² Les comportements différents pour un angle θ supérieur ou inférieur à 90° viennent du caractère bistable de la polarisation nucléaire étudiée au Chapitre 5 ou voir Figure 120.

10.2.2.1 Polarisation électronique

Commençons à nous intéresser à la polarisation circulaire, en l'exprimant maintenant en fonction de la projection du champ magnétique appliqué dans le plan B_{plan} (voir Figure 118).



Figure 118 : Polarisation circulaire pour X⁺ en fonction du champ magnétique appliqué avec un angle dans le plan φ =60° et avec un angle depuis l'axe *z* variant de 45 à 130° par incrément de 5° effectué en deux campagnes d'expérience .Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité et l'axe des abscisses à été décalé de -10mT. Les rampes de champ magnétique ont été effectuées par valeurs croissantes.

La largeur à mi-hauteur de la réponse en polarisation augmente de manière importante avec l'angle du champ magnétique appliqué d'environ 150mT pour un angle de 90° à 250mT pour un angle de 45° (voir Figure 116).

Cet effet est beaucoup moins clair dans un tracé en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan d'environ 150 à 180mT pour les mêmes angles (voir Figure 118). Cette différence d'environ 30mT de la réponse en polarisation est alors du même ordre de grandeur que celle que nous pouvons obtenir en faisant varier la puissance d'excitation du laser. Mais si nous nous intéressons uniquement au champ magnétique correspondant à la <u>valeur maximale</u> de la polarisation électronique (hors B=0), alors diminuer l'angle θ entre l'axe *z* et le champ appliqué semble la voie à suivre (voir Figure 119).



Figure 119 : Champ magnétique auquel a lieu le rebond de polarisation dans la partie positive du champ magnétique appliqué en fonction du cosinus de l'angle du champ magnétique appliqué pour les deux rampes.

Le champ magnétique de rebond de la polarisation évolue de façon quasi-linéaire avec le cosinus de l'angle θ entre l'axe z et le champ appliqué suivant approximativement la loi $B = B_n^0 \cos(\theta)$ avec ici $B_n^0 = 200 \pm 50$ mT (Meier Zarachenya 1984). Cette valeur est environ un ordre de grandeur plus forte que celle obtenue pour les centres donneurs dans GaAs massif. Cependant, la valeur importante prise ici par le champ Knight a pour conséquence que le champ nucléaire n'est plus strictement colinéaire au champ externe appliqué, le champ nucléaire moyen étant ici colinéaire à la somme du champ externe avec le champ Knight. Cette loi ne donne donc qu'un ordre de grandeur de la valeur de B_n^0 .

10.2.2.2 Bistabilité en champ magnétique incliné

La bistabilité de la polarisation de l'électron et de la polarisation des noyaux a été étudiée en champ transverse et pour des angles θ de 90°, 45° et 22.5° (voir Figure 120). La bistabilité en champ longitudinal pur (θ =0) à été étudiée dans en section 5.1.



Figure 120 : Polarisation (panneaux du haut) et somme du décalage Overhauser (panneau du bas) lors de rampes en champ magnétique croissantes (rouge) ou décroissantes (noir) pour trois angles du champ appliqué (90° , 45° et 22,5°) pour une puissance d'excitation de 40µW. Les courbes ont été corrigées du champ magnétique rémanent lors des rampes (ici +17mT entre les rampes croissantes et décroissantes).

En champ transverse aucune bistabilité n'est observée en fonction du champ magnétique appliqué (comme dans toutes les autres expériences réalisées sur des boîtes (111) sans contrainte). La différence de polarisation entre les deux rampes vient probablement d'une variation de la puissance d'excitation entre la rampe croissante et décroissante. Ce comportement diffère de celui observé dans les boîtes d'InGaAs (Krebs et al 2010).

Pour un angle de θ =45°, la bistabilité en champ magnétique n'est observée clairement que pour la polarisation nucléaire. Ceci signifie que la composante transverse de la polarisation nucléaire (qui protège l'électron contre la précession induite par le champ magnétique appliqué) disparaît pour des champs magnétiques comparables pour les deux rampes en champ magnétique. La protection de la polarisation électronique par compensation du champ magnétique transverse est donc suffisante dans le domaine de champ transverse compris entre -200 et 100mT environ.

Pour un angle θ =22,5° (une rampe plus proche d'une rampe en champ longitudinal que d'une rampe en champ transverse) apparaît alors une double bistabilité, pour la polarisation

électronique et pour la polarisation nucléaire. Ces bistabilités ont été étudiées plus en détail en champ longitudinal pur en section 5.1.2.

10.2.2.3 Rebond de la polarisation électronique

Une rampe complète de -2 à 2T en champ magnétique avec θ =22,5° a été réalisée. Nous observons un rebond de la polarisation électronique autour de -1T de champ magnétique appliqué soit autour de 380mT de champ magnétique transverse ainsi qu'une « asymptote » de polarisation autour de 20% de polarisation électronique à fort champ.



Figure 121 : Polarisation circulaire (gauche noir) et décalage Overhauser en fonction du champ magnétique appliqué pour QDA-juin2014 avec une rampe de champ magnétique décroissante et une modulation de l'intensité de la lumière à 3MHz.

La diminution de la polarisation électronique est liée à la précession du spin autour du champ transverse effectif (somme du champ transverse appliqué et du champ Overhauser transverse créé). De plus, le champ nucléaire est de signe contraire au champ magnétique appliqué.

A faible champ, le champ Overhauser a une valeur absolue plus importante que le champ appliqué entraînant la précession de l'électron.

Le champ Overhauser ayant une valeur de saturation, au niveau de la bosse de polarisation il se compense avec le champ appliqué ce qui limite la précession de l'électron. Si le champ Overhauser longitudinal continuait de protéger la polarisation contre les fluctuations de champ nucléaire, la polarisation remonterait à sa valeur initiale.

A plus fort champ, le champ appliqué devient prédominant, nous revenons à une courbe d'effet Hanle classique sans champ nucléaire. Nous pouvons aussi noter la présence d'une asymptote de polarisation liée à l'apparition d'un champ nucléaire suivant z qui stabilise la polarisation.

La dissymétrie de cette courbe vient d'une génération de la polarisation nucléaire suivant l'axe *z* plus facile si le champ nucléaire créé est de sens opposé au champ appliqué par rapport à un champ nucléaire de même sens que le champ appliquée (Krebs et al 2008, Urbaszek et al 2013).

Dans cette configuration θ =22,5°, nous pouvons donc créer un champ nucléaire transverse de l'ordre de 1T (soit environ 40µeV de décalage Overhauser transverse) comparable au champ créé dans les boîtes InGaAs pour des champs magnétiques transverses.

10.3 Excitation quasi-résonante

En utilisant une excitation quasi-résonante (à un phonon optique de la transition), nous pouvons générer des polarisations électroniques et nucléaires plus importantes. Tous ces effets ayant des comportements non linéaires, nous observons une variabilité importante dans les comportements. L'effet Hanle n'a été réalisé ici qu'en champ transverse. Les deux premières rampes croissantes de champ transverse appliqué montrent aussi un effet de repolarisation électronique autour de 200mT après sa chute jusqu'à une polarisation quasinulle autour de 120-150mT (voir Figure 122). Les deux rampes présentées ont été effectuées à la suite et le comportement général est identique même si la bosse apparaît à un champ différent avec une intensité du rebond plus faible pour la deuxième rampe. La stabilité de la puissance d'excitation n'est pas suffisante pour obtenir un comportement reproductible lors de deux rampes de champ magnétique successives. Cette repolarisation ressemble à la forme de l'effet Hanle obtenue en champ incliné proche d'un champ longitudinal (voir Figure 121). Ceci pourrait donc provenir de la génération d'un champ Overhauser transverse très important (en excitation quasi-résonante) grâce à une composante longitudinale du champ appliqué liée à des légers désalignement entre le plan de l'échantillon et celui défini par le champ magnétique.

Dans cette hypothèse, la courbe Hanle ne doit pas être symétrique et doit dépendre fortement de l'angle φ dans le plan (voir équation (113)). Pour vérifier cette hypothèse, des rampes croissantes de champ magnétique ont été réalisées pour des valeurs de φ allant de 0 à 90° par pas de 30° (voir Figure 124).



Figure 122 : Polarisation circulaire (noir) et décalage Overhauser (bleu) en fonction du champ magnétique transverse appliqué pour QDF-juin2014 pour deux rampes de champ magnétiques croissantes.

Les rampes en champ magnétique transverse réalisées de -500 à 400mT confirment que la forme de la réponse Hanle est asymétrique (voir Figure 123) avec ici seulement un « rebond » pour les champs magnétiques appliqués positifs.



Figure 123 : Polarisation circulaire (noir) et décalage Overhauser (bleu) en fonction du champ magnétique transverse appliqué pour QDF-juin2014 pour une rampe croissante de champ magnétique.

Le « rebond » en polarisation électronique n'a pas été retrouvé (nous pouvons observer que le champ nucléaire à champ magnétique appliqué nul est plus faible) mais la forme de l'effet

Hanle dépend fortement de l'angle dans le plan (voir Figure 124), variation liée à la différence de génération de polarisation nucléaire induite par la différence de valeur du champ magnétique longitudinal avec des formes de courbes Hanle proches de celles réalisées en champ magnétique incliné.



Figure 124 : Polarisation circulaire (noir) et décalage Overhauser (bleu) en fonction du champ magnétique transverse appliqué pour QDF-juin2014 pour une rampe croissante de champ magnétique pour $\varphi=0^{\circ}$, 30° (haut) pour $\varphi=60^{\circ}$, 90° (bas).

Une campagne d'expérience sur l'effet Hanle en champ magnétique incliné pompé par excitation quasi-résonante permettrait de confirmer les hypothèses sur la dissymétrie des réponses en polarisation circulaire et en décalage Overhauser en champ magnétique transverse. De plus, l'application d'un champ incliné pourrait amener à des comportements encore plus asymétriques en excitation quasi-résonante.

10.4 Conclusion

Les études en champ magnétique incliné sur les boîtes (111) mettent en évidence une dissymétrie de la réponse en polarisation électronique lorsque l'on fait varier le champ magnétique externe. Mais aucun effet Hanle « anormal » en champ transverse n'est observé dans les boîtes non contraintes de GaAs, contrairement au cas des boîtes InGaAs. Les premières mesures en excitation quasi-résonante en champ transverse ressemblent aux courbes Hanle en champ incliné obtenues sous excitation non-résonante. Dans ce type d'excitation, il semble que la réponse en polarisation et en effet Overhauser longitudinal est beaucoup plus sensible à la composante longitudinale résiduelle résultant de l'imprécision de l'angle θ entre \vec{B} et la normale à la surface de l'échantillon. Une étude systématique de l'effet Hanle en champ incliné en fonction de l'angle d'inclinaison du champ sous excitation quasi-résonante est l'étape suivante dans cette étude des effets nucléaires.

D ₂	E	Ē	C_2 \overline{C}_2	C'_2 $\overline{C'_2}$	$C_2^{\prime\prime}$ $\overline{C}_2^{\prime\prime}$					
C _{2v}	E	Ē	C_2 \overline{C}_2	$\sigma_{\rm v}$ $\overline{\sigma}_{\rm v}$	σ'_{v} $\overline{\sigma'_{v}}$	T I	ime nv.	Bases for D ₂	Bases for C_{2v}	
Γ_1		1	(Ì)	Ì	1		a	R or xyz	Z	
Γ_2	1	1	-1	1	-1		a	S _y or y	S_y or x	
Γ_3	1	1	1	-1	-1		a	S_z or z	S_z or xy	
Γ_4	1	1	-1	-1	1		a	S_x or x	S_x or y	
Γ_5	2	-2	0	0	0		с	$\phi(1/2, -1/2),$ $\phi(1/2, 1/2)$	$\phi(1/2, -1/2)$ $\phi(1/2, 1/2)$	
D ₃	E	$\overline{\mathbf{E}}$	$2C_3$	$2\overline{C}_3$	$3C_2'$	$3\overline{C}_{2}^{\prime}$	Time	Pagag	Pagoa	
C _{3v}	Е	Ē	2C ₃	$2\overline{C}_3$	$3\sigma_{\rm v}$	$3\overline{\sigma}_{\mathbf{v}}$	Inv.	for D_3	for C_{3v}	
Γ_1	1	1	1	1	1	1	a	R	R or z	
Γ ₂	1	1	1	1	$^{-1}$	-1	а	S_z or z	S_z	
Γ ₃	2	2	-1	-1	0	0	a	$(S_x - iS_y),$ $-(S_x + iS_y)$	$(S_x - iS_y),$ $-(S_x + iS_y)$	
Γ_4	2	-2	1	-1	0	0	С	$\phi(1/2,-1/2),\ \phi(1/2,1/2)$	$\phi(1/2,-1/2),\ \phi(1/2,1/2)$	
Γ_5	1	-1	-1	1	i	-i	b	$\phi(3/2,-3/2)$ - i $\phi(3/2,3/2)$	$\phi(3/2,-3/2)$ - i $\phi(3/2,3/2)$	
Γ ₆	1	-1	-1	1	-i	i	b	$\begin{array}{c} - (\phi(3/2, 3/2)) \\ -i\phi(3/2, -3/2) \end{array}$	$-(\phi(3/2,3/2))$ $-i\phi(3/2,-3/2))$	

Figure 125 : Table de caractère et fonction des bases de chaque représentation pour C_{2v} (haut) et C_{3v} (bas). Extrait de Koster et al 1963.

	$\Gamma_1 \Gamma_2 \Gamma_3$		Γ_3	Γ_4	Γ_5		
Γ ₁		$egin{array}{ccc} \Gamma_2 & \Gamma_3 \ \Gamma_1 & \Gamma_4 \ & \Gamma_1 \end{array}$		Γ_4	Γ_5		Γ_1 Γ_2 Γ_3
				Γ_3	Γ_5		
				Γ_2	Γ_5		
				Γ_1	Γ_5 $\Gamma_1 + \Gamma_2$		г,
					$+\Gamma_{3}$ +	Γ_4	1.8
Γ ₁	Γ_2	Γ_3		Γ_4	Γ_{5}	Γ_6	e maanaan ee maan di karibii dii 60 likkati
$\overline{\Gamma_1}$	Γ2	Г ₃		Γ_4	Γ5	Γ_6	Γ ₁
	Γ_1	Γ_3		Γ_4	Γ_6	Γ_5	Γ_2
		Γ ₁ +	Γ_2	$\Gamma_4 + \Gamma_5$	Γ_4	Γ_4	Γ_3
		,		$\Gamma_1 + \Gamma_2$	г,	Γ_3	Γ_4
C_{3v}		43		+ Γ3	Γ_2	Γ_1	Γ_{5}
						Γ_2	Γ_6

Figure 126 : Table de multiplication pour les groupes C_{2v} (haut) et C_{3v} (bas). Extrait de Koster et al 1963.

12 Table des figures

Figure 1 : Coordonnées utilisées pour décrire l'angle et la norme du champ magnétique Figure 2 : Règle de sélection optique pour une boîte quantique GaAs où les trous lourds et légers sont séparés en énergie. Nous pouvons noter que les forces d'oscillateurs s'inversent Figure 3 : Les trois niveaux d'énergie liés aux termes de l'échange coulombien à trois électrons sur des orbitales différentes avec les niveaux d'énergie correspondants. Les flèches Figure 4 : Intensité d'émission des quatre transitions de l'exciton en fonction du champ Figure 5 : Energie de liaison des trions X^+ (bleu) et X^- (rouge) et XX^0 (vert) en fonction de l'énergie d'émission de l'exciton pour différentes boîtes quantiques orientées selon (311)A (a), Figure 6 : Schéma des différents équipements du banc de mesure utilisé. Le chemin parcouru par la lumière est représenté en bleu. Les flèches marron indiquent les interactions Figure 7 : Image du laser He :Ne à travers le double-monochromateur pour le réseau 1800 traits avec la fente d'entrée ouverte à 20µm et la fente intermédiaire ouverte à 12mm. Les points sont les valeurs expérimentales, la ligne rouge est la modélisation de la réponse du Figure 8: Intensité d'émission d'une boîte quantique sous excitation linéaire, détection co (courbe rouge) ou cross (courbe noire) polarisée avec le laser pour deux énergies de laser: 23 meV au dessus de la transition (points) et 40 meV au dessus (lignes).Les flèches bleues Figure 9 : Schéma de la partie centrale de la tête de microscope. Les lames de verre toutes Figure 10: Diagramme polaire de l'intensité transmise par les voies d'excitation (bleu) et de détection (rouge) de la tête du microscope confocal pour un faisceau polarisé circulairement généré par un laser He :Ne, un polariseur linéaire et une lame quart d'onde obtenue par rotation du plan de polarisation de l'analyseur. La référence est obtenue par mesure de l'intensité transmise par le laser, le polariseur linéaire et la lame quart d'onde obtenue par

Figure 11:(a) Principe de fonctionnement d'une lame à cristaux liquides. La tension appliquée fait tourner les molécules des cristaux liquides changeant le retard appliqué à la lumière. (b) Le montage utilisé pour calibrer les lames à cristaux liquides. Nous pouvons noter que le Figure 12: Intensité transmise à travers la lame à cristaux liquides pour trois différentes positions de l'analyseur : colinéaire avec le polariseur (noir), orthogonale (bleu) ou un angle aléatoire (rouge). En orange les tensions à appliquer pour avoir les quatre polarisations qui Figure 13: Diagramme polaire de l'intensité transmise en fonction de l'angle entre l'analyseur et le polariseur pour une polarisation circulaire créée par la lame à cristaux liquides. Le taux Figure 14 : Dérivée de l'intensité réfléchie d'un réseau avec un pas de 5 µm illuminé par un laser He :Ne -6328Å) avec la lentille asphérique (focal 1,8mm et ouverture numérique 0,65) Figure 15 : Test d'immunité du banc expérimental aux vibrations du cryostat à circuit fermé d'hélium : Intensité réfléchie par le réseau placé dans le cryostat Atto1000 en fonction du temps, la durée totale de la mesure (typiquement 30s) est plus longue que la période typique Figure 16 : Processus d'élaboration des boîtes quantiques (111) par épitaxie à jet moléculaire : les gouttes métalliques de gallium agissent comme des centres de nucléation des boîtes quantiques de GaAs. Ce procédé est une illustration. Lors de la production des échantillons Figure 17 : Différents nano-objets obtenus par épitaxie par gouttelettes pour des boîtes quantiques mais aussi des nano-fils, ou des structures plus complexes comme des anneaux couplés (Mano et al 2005, Mano et al 2010, Jo et al 2010, Minari et al 2012, Jo et al 2012). 59 Figure 18 : Intensité de photoluminescence en fonction de la longueur d'onde d'émission pour des ensembles de boîtes. L'insert représente un agrandissement du domaine spectral des boîtes étudiées dans ce manuscrit. Les énergies d'émission sont données à titre indicatif sur Figure 19 : Schéma de la structure de l'échantillon, le GaAs est représenté en vert et l'AlGaAs en marron. Le paramètre qui varie entre les échantillons est la largeur de la barrière Figure 20: Photo d'un échantillon à charge ajustable contacté et attaché au nano-

Figure 21: Schéma de principe d'un échantillon à charge ajustable avec des motifs carrés de 10µm pour laisser passer la lumière. La transmission de l'électrode semi transparente est de Figure 22: Schéma de bande d'une structure à charge ajustable, le niveau de Fermi est représenté en bleu pour une tension appliquée nulle (traits pleins) ou non nulle (pointillés), tous les niveaux énergétiques de la boîte situés en dessous sont occupés du fait de l'effet tunnel. L'application d'un champ électrique modifie les bandes de conduction. Les zones de déplétion étant relativement étroites. Nous approximons le champ électrique dans la partie intrinsèque par un champ uniforme. Le potentiel électrostatique varie donc de façon quasi-Figure 23 : Courant en fonction de la tension appliquée sous éclairement, pour l'électrode 1 (ligne continue, E1) et l'électrode 2 (pointillé, E2) en decà (a) et au delà (b) de la tension Figure 24 : (a) Spectre de photoluminescence d'une boîte GaAs (111) sans dispositif de contrôle de charge extrait de Kuroda et al 2013. (b) Cartographie de l'intensité d'émission de la luminescence d'un échantillon à charge ajustable (barrière tunnel 30nm) pour des boîtes Figure 25 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée avec le Figure 26 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour une boîte à haute énergie QDD-oct2013. Les étiquettes indiquent l'état de charge de la transition (X pour une paire électron-trou, et l'exposant indique les charges en excès («+» Figure 27 : Cartographie de l'intensité d'émission pour quatre boîtes quantiques émettant à plus basse énergie. Les étiquettes indiquent l'état de charge de la boîte. (a) bleu coups<100, rouge coups>6000, (b) bleu coups<100, rouge coups>1000, (c) bleu coups<100 rouge Figure 28 : Caractéristiques courant-tension pour les échantillons avec une barrière tunnel de 20m réalisé sous éclairement pour la boîte quantique QDB-fev2014......71 Figure 29 : Cartographie de l'intensité d'émission pour deux boîtes avec des transitions abruptes entre X^0 et X^- et un élargissement de la transition optique de X^- aux deux bords du plateau......72 Figure 30 : Largeur à mi-hauteur de X⁻ en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014 (rouge) et QDB-feb2014 (noir)......73

Figure 31 : Cartographie de l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour Figure 32 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-feb2014. Les étiquettes indiquent les états de charge identifiés, les flèches indiquent les transitions associées à un même complexe excitonique. Le singulet associé à XX⁻ n'est pas visible avec cette échelle de Figure 33 : Intensité d'émission de QDP-feb2014 pour différentes valeurs de tension appliquée. A partir de X⁻, nous pouvons considérer que tous les photons émis proviennent du Figure 34 : Intensité de luminescence pour différents complexes en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014. Pour les complexes dont la structure fine est un doublet, seule Figure 35 : Polarisation circulaire (gauche) et intensité en échelle logarithmique (droite) de Figure 36 : Schéma des complexes négativement chargés pour l'un de leur état initial (haut) et l'un de leur état final (bas) après recombinaison. Les termes d'interaction coulombienne sont représentés en rouge pour des particules différentes (électron-trou) et bleu pour des particules de charge négative identique (électron électron). Les états confinés successifs de conduction ou de valence (c,v) sont étiquetés s,p. Les triangles pleins (creux) symbolisent l'état de spin Figure 37 : Schéma des complexes positivement chargés pour l'un de leur état initial (haut) et l'un de leur état final (bas) après recombinaison. Les termes d'interaction coulombienne sont représentés en rouge pour des particules différentes (électron-trou) et vert pour des particules de charge positive identique (trou-trou). Les états confinés successifs de conduction ou de valence (c,v) sont étiquetés s,p,\ldots 80 Figure 38 : Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X^{-*} à champ magnétique nul. Les flèches bleues (vertes) indiquent les écarts en énergie entre les niveaux séparés par l'échange entre électron-électron (électron-trou). Les nombres entre Figure 39 : Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X²⁻ à champ magnétique nul. Les flèches bleues (vertes) indiquent les écarts en énergie entre les niveaux séparés par l'échange entre électron-électron (électron-trou). Les nombres entre Figure 40 : Transitions optiques autorisées en polarisation σ^+ entre les différents états de X³⁻ à champ magnétique nul. Les flèches bleues indiquent les écarts en énergie entre les niveaux.

Les nombres entre parenthèse indiquent les rapports de force d'oscillateur. Les états finaux Figure 41 : Schéma récapitulatif des transitions pour X^{3-} à champ nul pour un état initial avec Figure 42 : Spectre complet de photoluminescence de X^{2-} , les échanges électron-électron (bleu) se mesurent entre les états triplet et le singulet. L'échange électron-trou se mesure entre Figure 43 : Valeurs des clivages d'échange coulombien entre un électron p et un trou s pour les différents complexes négativement chargés pour les cinq boîtes quantiques étudiées précédemment. Les complexes sont ordonnés par terme d'échange croissant pour le complexe Figure 44 : Evolution des clivages d'échange coulombien électron-électron (rouge, axe de gauche) et électron-trou (noir, axe de droite) pour l'état initial X^{2-} en fonction de la tension appliquée......90 Figure 45 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDQ-feb2014 en fonction de la tension Figure 46 : Spectres des états fondamentaux (haut) et état excité correspondant (bas) pour QDQ-feb2014 et QDP-feb2014 pour les complexes X^{2-} et X^{3-} : où l'électron sur l'état p est Figure 47 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-feb2014, les étiquettes indiquent Figure 48 : Courbe rouge : intensité d'émission intégrée normalisée de X⁻ en fonction du désaccord d'énergie entre le laser d'excitation et X⁻ pour QDU-oct2014. En insert le spectre d'émission de X⁻ pour un désaccord de 34,7meV. La polarisation des trous photo-générés est d'environ 50%. La courbe verte représente un spectre typique de luminescence de X⁻.........94 Figure 49 : Spectre de photoluminescence en excitation quasi-résonante pour X^+ (gauche) et X⁻ (droite) pour QDU-oct2014. Les spectres en polarisation croisée sont représentés avec des Figure 50 : Polarisation des trous mesurée à partir de la polarisation circulaire de la lumière émise (gauche) et décalage Overhauser (droite) en fonction de la puissance d'excitation du laser réglé sur la résonance à 1,754eV à 0,51V pour X⁻ pour QDU-oct2014......97 Figure 51 : Energie d'émission de X⁻ en fonction de la puissance d'excitation du laser réglé sur la résonance à 1,754eV à 0,51V pour QDU-oct2014......98 Figure 52 : Plage des valeurs de polarisation circulaire (gauche) et de décalage Overhauser (droit) pour différentes énergies d'excitation du laser en variant la tension appliquée de 0,5Và Figure 53 : Polarisation circulaire (noir) et décalage Overhauser de QDF-dec2014 (bleu) pour X⁻, le maximum d'intensité de luminescence est obtenu pour V=0,63V (flèche rouge) (gauche) et pour X^+ , le maximum d'intensité de luminescence est obtenu pour V=0,07V (flèche rouge) (droite). La différence d'énergie d'émission entre les deux extremums est de Figure 54 : Polarisation circulaire de la lumière émise (gauche) et décalage Overhauser (droite) en fonction de la tension appliquée pour la résonance à environ 1,754eV pour X⁻ pour QDU-OCT2014. L'énergie du laser est optimisée pour chaque tension pour avoir l'intensité Figure 55 : Etude en champ magnétique longitudinal d'une boîte quantique (111) sans contrôle de charge réalisée sur QDF-juillet2011. Seul X⁰, X⁺ et XX⁰, et des transitions non identifiées sont observables. Les chiffres 1et 2 indiquent deux boîtes quantiques différentes. Figure 56 : Position des quatre transitions d'un trion (X⁺ ou X⁻) en fonction de la valeur de g_{hl} . Figure 57 : Cartographie de l'intensité d'émission pour une rampe de champ magnétique positive et une détection σ^+ , σ^- et sa représentation en champ magnétique positif et négatif Figure 58 : (à gauche) Cartographie d'intensité d'émission de X⁻ en fonction du champ magnétique appliqué longitudinalement pour QDX-nov2013. (au milieu) Spectre d'intensité de X⁻ avec deux raies par polarisation. Les flèches bleues indiquent les différences d'énergie Figure 59 : Différence d'énergie entre les quatre raies de X⁻ permettant d'extraire les valeurs Figure 60 : Ecart d'énergie pour X^0 entre les états brillants (gauche) et noirs (droite). Les points rouges représentent les données expérimentales. La ligne noire est donnée par la modélisation des différences d'énergie entre les états brillants et noirs avec les valeurs Figure 61 : Intensité de photoluminescence pour X⁻ (haut) et X⁺ (bas) pour une détection circulaire σ^+ (rouge) et σ^- (noir) sous excitation σ^+ à 8,8T pour QDX-Nov2013. Les transitions

Figure 62 : Valeurs de g_e^s (haut) et g_h^s (bas) pour X⁺ en fonction de l'énergie d'émission de X⁰ pour différentes boîtes. Les carrés noirs représentent les mesures réalisées dans ce manuscrit, les carrés bleus sont extraits de Kunz 2013 et Durnev et al 2012. 111 Figure 63 : Cartographie d'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée pour QDP-feb2014, les étiquettes indiquent les états de charge identifiés. Les traits blancs indiquent les tensions auxquelles les rampes de champ magnétique ont été réalisées. 114 Figure 64 : Cartographie d'intensité d'émission avec une excitation et une détection σ^+ pour différentes tensions appliquées pour QDP-Feb2014. Les complexes observés vont de X²⁺ Figure 65 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^* en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\widehat{\uparrow}$ ($\widetilde{\Downarrow}$) indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont Figure 66 : Cartographie d'intensité d'émission théorique (gauche) et expérimentale (droite) d'X^{-*} pour QDC-Nov2013. Les paramètres utilisés pour la modélisation sont, $g_e^p = 0.47$, $\alpha_d = 5\mu eV.T^{-2}$, $\gamma = 25\mu eV$ et les paramètres issus des expériences sur X⁻ et X^{-*} : $\tilde{\Delta}_0 = 190\mu eV$, Figure 67 : Cartographie d'intensité d'émission pour XX⁻ en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014. La signature magnéto-optique est le miroir de celle de X^{*} (une fois soustrait le décalage diamagnétique)......121 Figure 68 : Cartographie d'intensité d'émission pour X+* en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\widehat{\uparrow}$ ($\widetilde{\Downarrow}$) indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont Figure 69 : Cartographie d'intensité d'émission théorique (gauche) et expérimentale (droite) de X^{+*} pour QDK-Nov2013. Les paramètres utilisés pour la modélisation sont, $g_{h1}^p = 2,5$,

 $g_{h2}^{p} = 0,4$, $\alpha_{d} = 13 \mu e V.T^{-2}$, $\gamma = 40 \mu e V$ et les paramètres issus des expériences sur X^{+} et X^{+*} : Figure 70 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{2+} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\widehat{\uparrow}$ ($\widetilde{\Downarrow}$) indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont Figure 71 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{2-} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDP-Feb2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\widehat{\uparrow}$ ($\widetilde{\Downarrow}$) indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont Figure 72 : (a) Cartographie d'intensité d'émission $d'X^{3-}$ pour un spectre large (bleu <100 coups et rouge >7000 coups), et (b) un zoom sur la partie principale à champ nul (bleu <100 Figure 73 : Cartographie d'intensité d'émission pour X³⁻pour QDU-sep2014, aucune structure Figure 74 : Cartographie d'intensité d'émission pour X^{4-} en fonction du champ magnétique longitudinal appliqué pour QDH-sep2014 (gauche) et schéma des transitions autorisées pour ce complexe : les traits pleins indiquent les transitions autorisées à champ nul. Les pointillés indiquent les transitions autorisées par le mélange dû au champ magnétique. $\hat{\uparrow}$ ($\tilde{\Downarrow}$) indique les états de trous mélangés à fort champ et \uparrow (\downarrow) indique les états d'électrons de conduction. La notation des états est indiquée dans le cas limite du fort champ magnétique. Ceux-ci sont Figure 75 : Polarisation circulaire (à gauche, en noir) et décalage Overhauser (à droite, en bleu) en fonction de la tension appliquée pour QDF-déc2014. Les inserts montrent l'intensité d'émission en fonction de la tension appliquée, les flèches orange sont positionnées à la

Figure 76 : Spectres de photoluminescence de X⁺ en fonction du champ magnétique sous excitation quasi-résonante à 1,756eV pour une détection co (rouge) ou cross-polarisée (bleu) avec le laser pour QDH-juin2015. La différence d'énergie entre deux transitions émettant Figure 77 : Position des quatre transitions d'un trion $(X^+ \text{ ou } X^-)$ en fonction des valeurs de décalage effectif pour chaque particule (électron ou trou). Cette figure modélise le décalage Figure 78 : Spectre d'intensité d'émission de X⁻ sous excitation linéaire quasi-résonante à un phonon optique de la transition principale à 1T (noir) et 8T (rouge) pour QDH-juin2015...142 Figure 79 : Position des niveaux $|h+\rangle$ et $|h-\rangle$ en fonction du signe de g_{h1} pour un champ Figure 80 : Energie d'émission des quatre transitions de X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV en fonction du champ magnétique appliqué pour une excitation circulaire (haut) et linéaire (bas). Les états dénotés brillants (noirs) sont les états les plus (moins) intenses pour Figure 81 : L'opposé du décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z pour X^+ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015......148 Figure 82 : C_{eff}/A en fonction du champ magnétique pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015. Au dèla de 3,4T la précision des mesures est insuffisante... 148 Figure 83 : Rapport de la constante hyperfine du trou (C_{eff}) et de l'électron (A) en fonction du champ magnétique pour différents champs magnétiques nucléaires ($\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B$) perçus par le trou reporté dans le cartouche en utilisant l'équation (81) pour des valeurs de $g_{h2}=0,67$, $g_{h1}=-$ Figure 84 : Rapport de la constante hyperfine du trou (C_{eff}) et de l'électron (A) en fonction du champ magnétique pour différents champs magnétiques nucléaires ($\Delta_{\rm h}^{\rm OHS}/g_{\rm h}\mu_{\rm B}$) perçus par le trou reporté dans le cartouche en utilisant l'équation (81) pour des valeurs de g_{h2} =-0,67, g_{h1} =-0,3avec C_1 =-11 et C_2 =-15. $\Delta_h^{OHS} / g_h \mu_B << B_z$ pour $B_z > 2T$151 Figure 85 : Champs magnétiques Overhauser $(\Delta_h^{OHS}/g_h\mu_B)$ (rouge) et appliqué (facteur g experimentaux) (noir) perçus par le trou (gauche) ou l'électron (droite) pour X⁺ sous Figure 86 : Polarisation nucléaire sondée par la mesure du décalage Overhauser (haut) et polarisation de spin électronique sondée par mesure de la polarisation circulaire émise (bas) en fonction du champ magnétique appliqué pour une rampe croissante en champ magnétique
Figure 89 : Champ magnétique total perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué lors d'une rampe croissante de valeur de B_z sous excitation quasi résonante à 1,750 eV pour QDH-juin2015. Les barres orange représentent la plage de champ magnétique Figure 90 : Décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z . C_{eff}/A en fonction du champ magnétique (droite) pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,756 eV pour QDF-déc2014......156 Figure 91 : Résumé des décalages Overhauser (haut) et du rapport des constantes hyperfines Figure 92 : Polarisation nucléaire sondée par la mesure du décalage Overhauser (haut) et polarisation électronique sondée par mesure de la polarisation circulaire émise (bas) en fonction du champ magnétique appliqué pour une rampe croissante en champ magnétique (rouge) immédiatement suivie d'une rampe décroissante (noir) pour X⁺ sous excitation quasi Figure 93 : Valeur absolue du champ magnétique total perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué pour QDF-dec2014 (rouge) et QDH-juin2015 (noir). La ligne orange représente la droite y=-B_z. Les flèches bleues indiquent les valeurs de champ pour Figure 94 : Opposé de la somme du décalage Overhauser pour les électrons et les trous en fonction du champ magnétique appliqué B_7 pour X⁺ sous excitation quasi résonante à 1,750 Figure 95 : (gauche) Valeur absolue du champ magnétique total (nucléaire et appliqué) perçu par l'électron en fonction du champ magnétique appliqué. (droite) Champ magnétique

Figure 96 : Intensité totale émise par X⁻ sous excitation quasi résonante en utilisant les états p de la bande de conduction en fonction d'un champ magnétique appliqué. Insert : Spectre de Figure 97 : Polarisation circulaire totale émise par X⁻ sous excitation quasi résonante en utilisant les états p de la bande de conduction en fonction d'un champ magnétique appliqué Figure 98 : Energie d'émission en fonction du champ magnétique appliqué pour X^{-} sous Figure 99 : à gauche : Inverse du décalage Overhauser pour les trous (noir), les électrons (rouge) et la somme (bleu) en fonction du champ magnétique appliqué B_z ; à droite : C_{eff}/A en fonction du champ magnétique pour X⁻ sous excitation quasi résonante à 1,756 eV pour Figure 100 : Valeurs des facteurs g pour l'électron et le trou dans le plan en fonction de Figure 101 : Polarisation circulaire pour X⁺ en fonction du champ magnétique appliqué avec un angle dans le plan $\varphi=60^\circ$ et avec un angle depuis l'axe z variant de 45 à 130° par incrément de 5° effectué en deux campagnes d'expériences (les deux courbes Or représentent le rattachement de ces campagnes pour θ =80°). Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité et l'axe des abscisses à été décalé de -10mT. Les rampes de champ Figure 102 : Polarisation circulaire lors de rampes en champ magnétique croissantes pour un angle de 45° sans modulateur (rouge) ou avec une modulation à 1MHz (bleu) pour une puissance d'excitation de 40µW. Les courbes ont été corrigées du champ magnétique rémanent lors de la rampe (ici -10mT)......171 Figure 103 : Cartographie d'intensité d'émission pour QDP-Feb2014 en fonction du champ électrique appliqué avec le réseau 1200 traits/mm au premier ordre pour une puissance d'excitation d'environ 10µW. Bleu<0 coups, rouge >4750 coups. Les lignes blanches sont des guides pour les yeux matérialisant les champs électriques auxquelles l'état de charge des transitions principales change. Les lignes pointillées oranges indiquent pour quelles valeurs de Figure 104 : Cartographie d'intensité d'émission des états excités 25 meV au dessus des transitions principales en fonction du champ magnétique pour différentes tensions appliquées correspondant à (de gauche à droite) X^+ , X^0 , X^- , X^{2-} , X^{3-} pour QDP-Feb2014 à haute

Figure 107 : PLE de X⁻ pour une tension appliquée de 0,51V et une puissance d'excitation de 50µW pour différents champs magnétiques appliqués pour le doublet le plus brillant. La polarisation de l'excitation est soit σ^+ (rouge) soit σ^- (noir), l'intensité est la somme de l'intensité des deux polarisations circulaires détectées (non normalisées). Nous pouvons noter Figure 108 : Règle de sélection optique pour une absorption entre les états hh₁ et e₂. Les transitions polarisées $\sigma^{+(-)}$ sont indiquées en rouge (bleu). Les forces d'oscillateur sont notées Figure 109 : Différence d'énergie entre les résonances en fonction de la polarisation circulaire d'excitation due à l'effet Zeeman en fonction du champ magnétique, pour la résonance à Figure 110 : Cartographie de l'intensité d'émission p-s des états excités à 25meV des transitions les plus brillantes avec superposition des énergies des résonances étudiées en magnéto-optique (points verts). Les valeurs des raies d'absorption et de photoluminescence Figure 111 : Spectre de photoluminescence de QDA-Juin2014 en fonction de la puissance d'excitation, le bruit de lecture de la caméra à transfert de charge (0,1 unité arb. ici) a été Figure 112 : Intensité d'émission de X^+ (rouge) et X^0 (noir) sans correction (à gauche) ou en Figure 113 : Polarisation circulaire (gauche noir) et décalage Overhauser (droite bleu) en fonction de la puissance d'excitation pour QDA-juin2014 sous excitation dans la barrière à Figure 114 : Polarisation circulaire (noir gauche) et décalage total (Overhauser + Zeeman) (bleu droite) pour X⁺ pour QDD-avr2014. La rampe de champ magnétique a été effectuée par valeurs croissantes Les abscisses sont corrigées du champ rémanent (-5mT ici)......192

Figure 118 : Polarisation circulaire pour X⁺ en fonction du champ magnétique appliqué avec un angle dans le plan φ =60° et avec un angle depuis l'axe z variant de 45 à 130° par incrément de 5° effectué en deux campagnes d'expérience .Les courbes ont été déplacées vers le haut pour plus de lisibilité et l'axe des abscisses à été décalé de -10mT. Les rampes de champ Figure 119 : Champ magnétique auquel a lieu le rebond de polarisation dans la partie positive du champ magnétique appliqué en fonction du cosinus de l'angle du champ magnétique Figure 120 : Polarisation (panneaux du haut) et somme du décalage Overhauser (panneau du bas) lors de rampes en champ magnétique croissantes (rouge) ou décroissantes (noir) pour trois angles du champ appliqué (90°, 45° et 22,5°) pour une puissance d'excitation de 40µW. Les courbes ont été corrigées du champ magnétique rémanent lors des rampes (ici +17mT Figure 121 : Polarisation circulaire (gauche noir) et décalage Overhauser en fonction du champ magnétique appliqué pour QDA-juin2014 avec une rampe de champ magnétique décroissante et une modulation de l'intensité de la lumière à 3MHz......199

13 Table des tableaux

Tableau 1 : Table de couplage du groupe C_{2v} entre la représentation Γ_5 et les représentations
$\Gamma_4, \Gamma_3, \Gamma_2$
Tableau 2 : Table des paramètres de structure fine liée aux termes d'échange coulombien des
différents complexes (entre les électrons et les trous (eh) et entre électron-électron (ee))
observés pour cinq boîtes différentes. Les valeurs sont en µeV. Les barres d'erreurs sont de
l'ordre de 1µeV pour δ_l , 50µeV pour les échanges électrons-électrons et de 5µeV pour les
termes d'échanges trous-électrons et électrons-trous
Tableau 3 : Valeurs des clivages d'échange dus à l'interaction coulombienne entre les
électrons et les trous à courte portée déterminée à partir des valeurs du Tableau 2 pour $X^0 X^{2+}$
et X ²⁻ . Les valeurs sont en μeV
Tableau 4 : Comparaison de la distance en énergie entre la transition principale et les
transitions observées en photoluminescence à plus haute énergie et les résonances en PLE.
Les transitions les plus intenses en photoluminescence sont indiquées en gras. Les énergies
sont en meV95
Tableau 5 : Valeur de g_e pour différentes boîtes pour X^0 , X^- et X^+
Tableau 6 : Valeur de g_h , g_{h1} et $ g_{h2} $ pour différentes boîtes pour X ⁰ , X ⁻ et X ⁺ , pour les trions
les valeurs de g_{h1} et g_{h2} sont déduites des ratios d'intensité entre les états brillants et noirs. 110
Tableau 7 : Signe des différentes grandeurs physiques utilisées pour décrire les effets
nucléaires sous excitation optique polarisée σ^+ dans la convention <i>B</i> , $gh = \sqrt{g_{h1}^2 + g_{h2}^2}$. Le signe
de g_e peut quand à lui être déterminé (il est positif dans ces boîtes) voir Sallen et al 2014 143

14 Références

Abbarchi et al	M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, C. A. Mastrandrea,
2010	A. Vinattieri, M. Gurioli, and T. Tsuchiya
	Physical Review B 82 201301(R) (2010)
Abragam 1961	A. Abragam
	Principles of nuclear magnetism Oxford university press, New York
	(1961)
Akimov et al	I. A. Akimov, A. Hundt, T. Flissikowski, and F. Henneberger
2002	Applied Physics Letters 81, 4730 (2002)
Akopian et al	N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni,
2006	B.D. Gerardot, and P.M. Petroff
	Phyiscal Review Letters 96, 130501 (2006)
Aspnes 1976	D. E. Aspnes
	Physical Review B 12 5531 (1976)
Bayer et al	M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev,
1999	F. Schäfer, and J. P. Reithmaier
	Phyiscal Review Letters 82 1748 (1999)
Belhadj et al	T. Belhadj, T. Kuroda, CM. Simon, T. Amand, T. Mano, K. Sakoda,
2008	N. Koguchi, X. Marie and B. Urbaszek
	Physical Review B 78, 205325 (2008)
Belhadj et al	T. Belhadj, C. M. Simon, T. Amand, P. Renucci, B.Chatel, O. Krebs,
2009	A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie and B. Urbaszek
	Phyiscal Review Letters 103, 086601 (2009)
Benson et al	O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto
2000	Phyiscal Review Letters 84, 2513 (2000)
Blackwood et	E. Blackwood, M. J. Snelling, R. T. Barley, S. R. Andrews, C. T. B. Foxon
al 1994	Physical Review B 50 14246 (1994)
Bocquel et al	J. Bocquel, A. D. Giddings, T. Mano, T. J. Prosa, D. J. Larson, and
2014	P. M. Koenraad
	Applied Physics Letters 105, 153102 (2014)

Bouet et a	al	L. Bouet, M. Vidal, T. Mano, N. Ha, T. Kuroda, M. V. Durnev,
2014		M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, X. Marie, T. Amand, K. Sakoda, G. Wang,
		and B. Urbaszek
		Applied Phyiscs Letters 105, 082111 (2014)
Bouet Thès	se	L. Bouet
2015		http://www.theses.fr/2015ISAT0033
Brackenhoff	et	P. Brackenhoff, G. J. Blom, and P. Barends
al 1979		Journal of Microscopy, 117 219, (1979)
Braker et a	al	A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler,
2005		A. Shabaev, Al. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev, and
		I. A. Merkulov
		Phyiscal Review Letters 94, 047402 (2005)
Braun et a	al	PF. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci,
2005		V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto
		Physical Review Letters 94, 116601 (2005)
Braun et a	al	PF. Braun, B. Urbaszek, T. Amand, X. Marie, O. Krebs, B. Eble,
2006		A. Lemaitre, and P. Voisin
		Physical Review B 74, 245306 (2006)
Burkard et a	al	G. Burkard, D. Loss and D. P. DiVincenzo
1999		Physical Review B 59, 2070 (1999)
Chekhovich of	el	E. A. Chekhovich, M. M. Glazov, A. B. Krysa, M. Hopkinson,
al 2012		P. Senellart, A. Lemaître, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii
		Nature Physics 9,74-78 (2012)
Colton et a	al	J. S. Colton, T. A. Kennedy, A. S. Bracker, and D. Gammon
2004		Physical Review B 69, 121307 (R) (2004)
Cortez et a	al	S. Cortez, O. Krebs, S. Laurent, M. Senes, X. Marie, P. Voisin, R. Ferreira,
2002		G. Bastard, J-M. Gérard, and T. Amand
		Physical Review Letters 89, 207401 (2002)
Dalgarno et a	al	P. A. Dalgarno, M. Ediger, B. D. Gerardot, J. M. Smith, S. Seidl,
2008		M. Kroner, K. Karrai, P. M. Petroff, A. O. Govorov, and R. J. Warburton
		Physical Review Letters 100, 176801 (2008)
De Greve et a	al	K. De Greve, P. L. McMahon, D. Press, T. D. Ladd, D. Bisping,
2011		C. Schneider, M. Kamp, L.Worschech, S. Höfling, A. Forchel, and
		Y. Yamamoto
		Nature physics vol 7 p 872-878 (2011)

De Greve et al	K. De Greve, L. Yu, P. L. McMahon, J. S. Pelc, C. M. Natarajan,
2012	N. Y. Kim, E. Abe, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling,
	R. H. Hadfield, A. Forchel, M. M. Fejer, and Y. Yamamoto
	Nature vol 491, p 421–425 (2012)
Delteil et al	A. Delteil, Z. Sun, Wbo Gao, E. Togan, S Faelt and Ataç Imamoğlu
2016	Nature physics vol 12 p 218-223 (2016)
Desfond el al	P. Desfonds, B. Eble, F. Fras, C. Testelin, F. Bernardot, M. Chamarro,
2010	B. Urbaszek, T. Amand, X. Marie, J. M. Gérard, V. Thierry-Mieg,
	A. Miard, and A. Lemaître
	Applied Physics Letters 96, 172108 (2010)
Dousse et al	A. Dousse, J. Suffczyński, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes,
2010	J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart
	Nature vol 466 p217-220 (2010)
Dreiser et al	J. Dreiser, M. Atatüre, C. Galland, T. Müller, A. Badolato, and
2013	A. Imamoglu
	Physical Review B 77, 075317 (2008)
Dupertuis et al	M. A. Dupertuis, K. F. Karlsson, D.Y. Oberli, E. Pelucchi, A. Rudra,
2011	P. O. Holtz, and E. Kapon
	Physical Review Letters 107, 127403 (2011)
Durnev et al	M. V. Durnev, M. M. Glazov, and E. L. Ivchenko, M. Jo, T. Mano,
2013	T. Kuroda, and K. Sakoda, S. Kunz, G. Sallen, L. Bouet, X. Marie,
	D. Lagarde, T. Amand, and B. Urbaszek
	Physical Review B 87, 085315 (2013)
Durnev 2014	M. V. Durnev
	Physics of the Solid State, 57, 6, pages 1223–1235 (2015)
Durnev et al	M. V. Durnev, M. Vidal, L. Bouet, T. Amand, M. M. Glazov,
2016	E. L. Ivchenko, P. Zhou, G. Wang, T. Mano, N. Ha, T. Kuroda, X. Marie,
	K. Sakoda, and B. Urbaszek
	Physical Review B 93, 245412 (2016)
Eble et al 2006	B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, K. Kowalik, A. Kudelski, P. Voisin,
	B. Urbaszek, X. Marie, and T. Amand
	Physical Review B 74, 081306(R) (2006)
Eble Thèse	B. Eble
2006	http://www.theses.fr/2006PA066607 (2006)

Eble et al 2009	B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand,
	A. Miard, A. Lemaître, X. Marie, and M. Chamarro
	Physical Review Letters 102, 146601 (2009)
Ediger et al	M. Ediger, P. A. Dalgarno, J. M. Smith, B. D. Gerardot, R. J. Warburton,
2005	K. Karrai et P. M. Petroff
	Applied Physic Letters 86, 211909 (2005)
Ediger et al	M. Ediger, G. Bester, B. D. Gerardot, A. Badolato, P. M. Petroff, K. Karrai,
2007a	A. Zunger, and R. J. Warburton
	Physical Review Letters 98, 036808 (2007)
Ediger et al	M. Ediger, G. Bester, A. Badolato, P. M. Petroff, K. Karrai, A. Zunger
2007b	And R. J. Warburton
	Nature Physics 3 p 774-779 (2007)
Eickhoff et al	M. Eickhoff, B. Lenzman, G. Flinn, and D. Suter
2002	Physical Review B 65 125301 (2002)
Fallahi et al	P. Fallahi, S. T. Y_lmaz, and A. Imamoglu
2010	Physical Review Letters 105, 257402 (2010)
Ferreira 2002	R. Ferreira
	Physica E 13 216 – 219 (2002)
Finley et al	J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaı [^] tre, A. I. Tartakovskii,
2001	R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle,
	and P. A. Maksym
	Physical Review B 63, 161305(R) (2001)
Fischer et al	Jan Fischer, W. A. Coish, D. V. Bulaev, and Daniel Loss
2008	Physical Review B 78, 155329 (2008)
Gammon et al	D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park
1996	Physical Review Letters 76 3005 (1996)
Gammon et al	D. Gammon, Al. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, and
2001	D. Park, S.W. Brown, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov
	Physical Review Letters 86, 5176 (2001)
Godden et al	T. M. Godden, J. H. Quilter, A. J. Ramsay, Y. Wu, P. Brereton,
2012	S. J. Boyle, I. J. Luxmoore, J. Puebla-Nunez, A. M. Fox, and
	M. S. Skolnick
	Physical Review Letters 108, 017402 (2012)
Gourdon et al	C. Gourdon and P. Lavallard
1997	Physical Review B 6 4644 (1997)

Greilich et al	A. Greilich, S. G. Carter, D. Kim, A. S. Bracker, and D. Gammon
2011	Nature Photonics vol 5, p702–708 (2011)
Hartmann et al	A. Hartmann, L. Loubies, F. Reinhardt, and E. Kapon
1997	Applied Physics Letters 71, 1314 (1997)
Ivchencko 2005	E. L. Ivchenko,
	Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures (Alpha Science,
	Harrow UK, 2005).
Juska et al 2013	G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska, and
	E. Pelucchi
	Nature photonic 7, p527–531 (2013)
Jo et al 2010	M. Jo, T. Mano, and K. Sakoda
	Applied Physics Express 3 045502 (2010)
Jo et al 2012	M. Jo, T. Mano, M. Abbarchi, T Kuroda, Y. Sakuma, and K. Sakoda
	Cryst. Growth Des., 12, 1411–1415 (2012)
Yoyce et al	B.A. Joyce, J.L. Sudijono, J.G. Belk, H. Yamaguchi, W.M. Zhang,
1997	H.T. Dobbs, A. Zangwill, D.D. Vvedensky and T.S Jones
	Japanese Journal of Applied Physics 36 4111-4117 (1997)
Jovanov et al	V. Jovanov, S. Kapfinger, M. Bichler, G. Abstreiter, and J. J. Finley
2010	Physical Review B 84, 235321 (2011)
Kaji et al 2007	R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto
	Applied Physics Letters 91, 261904 (2007)
Kalevich 1986	V. K. Kalevich
	Fiz. Tverd Tela 28 3462-3465 (1986)
Karlsson et al	K. F. Karlsson, D.Y. Oberli, M.A. Dupertuis, V. Troncale, M. Byszewski,
2015	E. Pelucchi, A. Rudra, P. OHoltz and E. Kapon
	New Journal of Physics 17 103017 (2015)
Karrai et al	K. Karrai, R. J. Warburton, C. Schulhauser, A. Högele, B. Urbaszek,
2004	E. J. McGhee A. O. Govorov, J. M. Garcia, B. D. Gerardot, and
	P. M. Petroff
	Nature vol 427 p 135-138 (2004)
Keizer et al	J. G. Keizer, J. Bocquel, P. M. Koenraad, T. Mano, T. Noda, and K. Sakoda
2010	Applied Physics Letters 96, 062101 (2010)
Kesteren et al	H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, A. J. A. van der Poel, C. T. Foxon
1990	Physical Review B 41.5283 (1990)

Knight 1949	W.D. Knight
	Physical Review 76 1259.2 (1949)
Koguchi et al	N. Koguchi, S. Takahashi and T. Chikyow
1991	Journal of Crystal Growth 111 p688-692 (1991)
Koster et al	G. F. Koster, J.O. Dimmock, R. G. Wheeler, H. Statz
1963	Properties of the thirty two points group, M.I.T. press, Cambridge
	Massachusetts (1963)
Kotlyar et al	R. Kotlyar and T. L. Reinecke
2001	Physical Review B 63, 085310 (2001)
Kowalik et al	K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaître, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin, and
2005	J. A. Gaj
	Applied Physics Letters 86, 041907 (2005)
Krebs et al	O. Krebs, B. Eble, A. Lemaître, P. Voisin, B. Urbaszek, T. Amand, and
2008	X. Marie
	C. R. Physique 9 874–884 (2008)
Krebs et al	O. Krebs, P. Maletinsky, T. Amand, B. Urbaszek, A. Lemaître, P. Voisin,
2010	X. Marie and A. Imamoglu
	Physical Review Letters 104, 056603 (2010)
Kumano et al	H. Kumano, T. Harada, I. Suemune, H. Nakajima, T. Kuroda,
2016	T. Mano, K. Sakoda, S. Odashima, and H. Sasakura
	Applied Physics express 9, 032801 (2016)
Kuroda et al	K. Kuroda, T. Kuroda, K. Watanabe, T. Mano, K. Sakoda, G. Kido, and
2007	N. Koguchi
	Applied Physics Letters 90 051909 (2007)
Kuroda et al	T. Kuroda, T. Mano, N. Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo,
2013	M. Abbarchi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, and T. Amand
	Physical Review B 88, 041306(R) (2013)
Kunz Thèses	S. Kunz
2013	http://www.theses.fr/2013ISAT0003
Lai et al 2006	C.W. Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu
	Physical Review Letters 96, 167403 (2006)
Langbein et al	W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and
2004	A. D. Wieck
	Physical Review B 69, 161301 (R) (2004)

Lejeune et al	P Le Jeune, D Robart, X Marie, T Amand, M Brousseau, J Barrau,
1997	V Kalevich and D Rodichev
	Semicond. Sci. Technol. 12 380-383 (1997).
Liu et al 2014	X. Liu, N. Ha, H. Nakajima, T. Mano, T. Kuroda, B. Urbaszek, H. Kumano,
	I. Suemune, Y. Sakuma, and K. Sakoda
	Physical Review B 90, 081301(R) (2014)
Luo et al 2015	JW. Luo, G. Bester, and A. Zunger
	Physical Review B 92, 165301 (2015)
Luxmoore et al	I. J. Luxmoore, N. A. Wasley, A. J. Ramsay, A. C. T. Thijssen, R. Oulton,
2013	M. Hugues, S. Kasture, V. G. Achanta, A. M. Fox, and M. S. Skolnick
	Physical Review Letters 110, 037402 (2013)
Ma et al 2001	W. Ma, R. Nötzel, Hans-Peter Schönherr, and Klaus H. Ploog
	Applied Physics Letters 79, 4219 (2001);
Makhonin et al	M. N. Makhonin, K. V. Kavokin, P. Senellart, A. Lemaître, A. J. Ramsay,
2011	M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii
	Nature material vol 10 p 844-847 (2011)
Maletinsky et al	P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu
2007	Physical Review B 75 , 035409 (2007)
Mano et al	T. Mano, T. Kuroda, S. Sanguinetti, T. Ochiai, T. Tateno, J. Kim, T.Noda,
2005	M. Kawabe, K. Sakoda, G.Kido, and N. Koguchi
	Nano letters vol 5 p 425-428 (2005)
Mano et al	T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake,
2010	K. Mitsuishi, and K. Sakoda
	Applied Physics Express 3065203 (2010)
Marzin et al	JY. Marzin, JM. Gerard, A. Izrael, D. Barrier and G. Bastard
1994,	Physical Review Letters 73 716 (1994)
Mashkov et al	I. V. Mashkov, C. Gourdon, P. Lavallard, and D. Yu Roditchev
1997	Physical Review B 55 13 761 (1997)
Meier	F. Meier and B. P. Zakharchenya
Zarachenya	Optical Orientation (North-Holland, New York, 1984)
1984	
Merkulov et al	I. A. Merkulov, Al. L. Efros and M. Rosen
2002	Physical Review B, 65, 205309 (2002)

Miller e	et	al	B. T. Miller, W. Hansen, S. Manus, R. J. Luyken, A. Lorke, and
1997			J. P. Kotthaus
			Physical Review B 57 (11) p6764-6769 (1997)
Minari e	et	al	S. Minari, L. Cavigli, F. Sarti, M. Abbarchi, N. Accanto, G. Muñoz
2012			Matutano, S. Bietti, S. Sanguinetti, A. Vinattieri, and M. Gurioli
			Applied Physics Letters 101, 172105 (2012)
Minsky 19	953		U.S. Patent 3013467. 30
Nilson e	et	al	J. Nilsson, R. M. Stevenson, K. H. A. Chan, J. Skiba-Szymanska,
2013a			M. Lucamarini, M. B. Ward, A. J. Bennett, C. L. Salter, I. Farrer,
			D. A. Ritchie, and A. J. Shields
			Nature Photonics vol 7, p 311–315 (2013)
Nilson e	et	al	J. Nilsson, L. Bouet, A. J. Bennett, T. Amand, R. M. Stevenson, I. Farrer,
2013b			D. A. Ritchie, S. Kunz, X. Marie, A. J. Shields, and B. Urbaszek
			Physical Review B, 88, 085306 (2013)
Nowak o	et	al	A. K. Nowak, S. L. Portalupi, V. Giesz, O. Gazzano, C. Dal Savio,
2014			PF. Braun, K. Karrai, C. Arnold, L. Lanco, I. Sagnes, A. Lemaître, and
			P. Senellart
Oberli 201	12		Nature Communications vol5, 3240 (2014) D. Y. Oberli
			Physical Review B 85, 155305 (2012)
Overhause	er		A. W. Overhauser
1953			Physical Review 92 411 (1953)
Petta et al	200	5	J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby,
			M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, A. C. Gossard
			Science Vol 309 p 2180-2184 (2005)
Poem e	t	al	E. Poem, Y. Kodriano, C. Tradonsky, N. H. Lindner, B. D. Gerardot,
2010			P. M. Petroff and D. Gershoni
			Nature Physics vol 6, p 993–997 (2010)
Pryor et al	1 200)6	C. E. Pryor and M. E. Flatté
			Physical Review Letters 96, 026804 (2006)
Salis et al	200	1	G. Salis, D. D. Awschalom, Y. Ohno and H. Ohno
			Physical Review B 64 195304 (2001)

Sallen	et	al	G. Sallen, B. Urbaszek, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, T. Kuroda,
2011			T. Mano, S. Kunz, M. Abbarchi, K. Sakoda, D. Lagarde, A. Balocchi,
			X. Marie, and T. Amand
			Physical Review Letters 107, 166604 (2011)
Sallen	et	al	G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget,
2014			O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda, and B. Urbaszek
			Nature communications, 5.4268 (2014)
Sanada	et	al	H. Sanada, T. Sogawa, H. Gotoh, Y. Tokura, H. Yamaguchi, H. Nakano,
2009			and H. Kamada
			Physical Review B 79, 121303 (R) (2009)
Seidl et a	al 200	06	S. Seidl, M. Kroner, A. Högele, K. Karrai, R. J. Warburton, A. Badolato,
			and P. M. Petroff
			Applied Physics Letters 88, 203113 (2006)
Seguin	et	al	R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Po ["] tschke, U.W. Pohl, and D. Bimberg
2005			Physical Review Letters 95, 257402 (2005)
Semenov	v et	al	Y. G. Semenov and K. W. Kim
2003			Physical Review B 67, 073301 (2003)
Singh	et	al	R. Singh and G. Bester
2009			Physical Review Letters 103, 063601 (2009)
Singh	et	al	R. Singh and G. Bester
2010			Physical Review Letters 104, 196803 (2010)
Skiba-			J. Skiba-Szymanska, E. A. Chekhovich, A. E. Nikolaenko,
Szymans	ska	et	A. I. Tartakovskii, M. N. Makhonin, I. Drouzas, M. S. Skolnick, and
al 2008			A. B. Krysa
			Physical Review B 77, 165338 (2008)
Smith	et	al	J. M. Smith, P. A. Dalgarno, B. Urbaszek, E. J. McGhee, G. S. Buller,
2003			G. J. Nott, R. J. Warburton, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff
			Applied Physics Letters 82, 3761 (2003)
Stevenso	on et	al	R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson ₂ , K. Cooper, D. A. Ritchie and
2006			A. J. Shields
			Nature vol 439 p 179-182 (2006)
Stock	et	al	E. Stock, T. Warming, I. Ostapenko, S. Rodt, A. Schliwa, J. A. Töfflinger,
2010			A. Lochmann, A. I. Toropov, S. A. Moshchenko, D. V. Dmitriev,
			V. A. Haisler, and D. Bimberg
			Applied Physics Letters 96, 093112 (2010)

Sugiyama et al	Y. Sugiyama, Y. Sakuma, S. Muto, and N. Yokoyama
1995	Applied Physics Letters 67, 256 (1995)
Tartakovshii et	A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal'ko, A. B. Van'kov,
al 2007	J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P.W. Fry,
	A. Tahraoui, HY. Liu, and M. Hopkinson
	Phyiscal Review Letters 98 , 026806 (2007)
Testelin et al	C. Testelin, F. Bernardot, B. Eble, and M. Chamarro
2009	Physical Review B 79, 195440 (2009)
Urbaszek et al	B. Urbaszek, R. J.Warburton, K. Karrai, B. D. Gerardot, P.M. Petroff, and
2003	J.M. Garcia
	Physical Review Letters 90 247403 (2003)
Urbaszek et al	B. Urbaszek, X. Marie, T.Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky,
2013	A. Högele, A Imamoglu
	Review of Modern Physics, 85, 79-133 (2013)
Van der Poel et	W.A.J.A. van der Poel, L.G.J. Severens and C.T. Foxon
al 1990	Optics communication 76 116 (1990)
Van Hattem et	B. Van Hattem, P. Corfdir, P. Brereton, P. Pearce, A. M. Graham,
al 2013	M. J. Stanley, M. Hugues, M. Hopkinson, and R. T. Phillips
	Physical Review B 87, 205308 (2013)
Vasanelli et al	A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard
2002	Physical Review Letters 89, 216804 (2002)
Zakharchenya	B. I. Zakharchenya, V. G. Fleisher, R. I. Dzhioev, Yu. P. Veshchunov and
et al 1971	I. B. Rusanov
	JETP 13 p137 (1971)

Les boîtes quantiques semiconductrices, confinées dans les trois directions de l'espace, ont une structure électronique proche de celle d'un atome. Une excitation lumineuse y crée des états hors équilibre entraînant l'émission des différents états de charge. Ce travail porte sur l'étude de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs produites par une méthode d'épitaxie par jet moléculaire modifiée sur un substrat de GaAs (111) insérées dans une structure de type diode. La première partie porte sur la séparation des différents états de charge dans une boîte unique par la tension appliquée puis leur identification compte tenu de l'échange coulombien et de leur propriètes magnéto-optiques. Une deuxième partie porte sur l'interaction hyperfine des trous avec le champ nucléaire. Un modèle d'Hamiltonien effectif est proposé pour cette interaction. Des phénomènes de bistabilité, en champ magnétique, de la polarisation des spins nucléaire et électroniques sont mis en évidence.

The electronic structure of a semiconductor quantum dot, with 3D carrier confinement on the nano-scale, is close to an atom with discrete state. Above-gap laser excitation creates different exciton state that show very rich emission patterns. This work studies GaAs/AlGaAs quantum dots grown droplet epitaxy on (111)A GaAs substrate embedded in a diode structure. The first part of this thesis presents the spectral separation of exciton complexes due to the bias applied to the sample; the different charge states are identified by analyzing the Coulomb exchange interaction and magneto-optics behavior. The second part studies the hyperfine interaction of the hole spin confined to a dot with the nuclear spins of the atoms that form the dot. An effective Hamiltonian model is proposed for this interaction. Bistable nuclear and also carrier spin polarization states are uncovered in magnetic field dependent measurements.