



**HAL**  
open science

# Propriétés des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage des nanotrous

Andrey Pankratov

► **To cite this version:**

Andrey Pankratov. Propriétés des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage des nanotrous. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2017. Français. NNT : 2017PA066028 . tel-01589000

**HAL Id: tel-01589000**

**<https://theses.hal.science/tel-01589000>**

Submitted on 18 Sep 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.



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

Spécialité

**Science des matériaux**

École doctorale physique et chimie des matériaux (ED 397)

Présentée par

**Andrey PANKRATOV**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Sujet de la thèse:

**Propriétés des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs  
obtenues par remplissage des nanotrous**

Soutenance prévue le 14 mars 2017 devant le jury composé de:

Rapporteur	David FERRAND	Professeur, Université de Grenoble Alpes
Rapporteur	Hélène CARRÈRE	Maître de Conférences – HDR, INSA Toulouse
Examineur	Abhay SHUKLA	Professeur, Université Pierre et Marie Curie
Examineur	Julien HOUEL	Maître de Conférences, Université Claude Bernard, Lyon
Directeur de thèse	Christophe TESTELIN	Directeur de Recherche, CNRS
Membre invité	Benoît EBLE	Maître de Conférences, Université Pierre et Marie Curie

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

---

# Table des matières

<b>1 Propriétés fondamentales des boîtes quantiques</b>	<b>19</b>
1.1 Boîtes quantiques . . . . .	20
1.2 Structure de bandes pour les électrons et les trous . . . . .	20
1.3 Confinement spatial . . . . .	22
1.4 Etats excitoniques et transitions optiques . . . . .	24
1.4.1 Photoluminescence . . . . .	24
1.4.2 Exciton . . . . .	25
1.4.3 Règles de sélection optique . . . . .	27
1.4.4 Etats propres de l'exciton/rôle de l'interaction d'échange . . . . .	27
1.4.5 Trions positif et négatif . . . . .	31
1.4.6 Biexciton . . . . .	31
1.4.7 Conclusion partielle . . . . .	33
<b>2 Echantillons et dispositifs expérimentaux</b>	<b>35</b>
2.1 Méthodes de croissance des boîtes . . . . .	36
2.1.1 Auto-assemblage (InAs/GaAs) . . . . .	36
2.1.2 Gouttelettes . . . . .	38
2.1.3 Remplissage de nanotrous . . . . .	39
2.2 Fabrication des échantillons . . . . .	44
2.2.1 Boîtes quantiques uniques neutres . . . . .	45
2.2.2 Boîtes quantiques uniques chargées . . . . .	47
2.3 Montages expérimentaux . . . . .	53
2.3.1 Expérience de spectroscopie des états . . . . .	53
2.3.2 Expérience de micromagnétophotoluminescence . . . . .	57
2.3.3 Expériences menées . . . . .	59
<b>3 Polarisation de l'émission des boîtes quantiques et effets du mélange des trous lourds et légers</b>	<b>61</b>
3.1 Introduction . . . . .	62
3.2 Contributions à l'effet du mélange . . . . .	62

3.2.1	Effet du confinement . . . . .	65
3.2.2	Effet de l'anisotropie planaire . . . . .	67
3.2.3	Effet des contraintes . . . . .	69
3.2.4	Effet d'alliage . . . . .	69
3.2.5	Effet des interfaces de basse symétrie . . . . .	70
3.2.6	Effet de la symétrie $C_{2v}$ de la boîte quantique associé à l'inéquivalence des directions $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$ . . . . .	70
3.2.7	Supercouplage . . . . .	71
3.3	Effet du mélange sur l'émission excitonique polarisée . . . . .	72
3.3.1	Couplage exciton-lumière . . . . .	72
3.3.2	Effet du mélange et émission polarisée . . . . .	74
3.4	Boîtes InAs/GaAs . . . . .	76
3.5	Boîtes GaAs/AlGaAs . . . . .	80
3.5.1	Paramètres des échantillons . . . . .	80
3.5.2	Polarisation de l'émission excitonique . . . . .	82
3.5.3	Statistique et comparaison InAs versus GaAs/AlGaAs . . . . .	84
3.6	Conclusion . . . . .	88
<b>4</b>	<b>Paramètres magnéto-optiques des boîtes quantiques</b>	<b>91</b>
4.1	Introduction . . . . .	92
4.2	Effet de champ magnétique. Effet Zeeman . . . . .	93
4.2.1	Convention des signes . . . . .	93
4.2.2	Configuration Faraday . . . . .	94
4.2.3	Configuration Voigt . . . . .	96
4.3	Décalage diamagnétique . . . . .	97
4.4	Résultats expérimentaux: boîtes InAs/GaAs . . . . .	99
4.4.1	Spectres de photoluminescence en champ magnétique (configuration Voigt), $g_{e,x}$ et $g_{h,x}$ . . . . .	100
4.5	Résultats expérimentaux: boîtes GaAs/AlGaAs . . . . .	102
4.5.1	Spectres de photoluminescence sous champ magnétique - Faraday .	102
4.5.2	Spectres de photoluminescence en champ magnétique - Voigt, $g_{e,x}$ et $g_{h,x}$ . . . . .	107
4.6	Conclusion . . . . .	112
<b>5</b>	<b>Polarisation de la luminescence des boîtes quantiques sous champ magnétique</b>	<b>113</b>
5.1	Introduction . . . . .	114
5.2	Résultats expérimentaux . . . . .	115

5.2.1	Polarisation de luminescence des branches excitoniques sous champ magnétique (Voigt) . . . . .	115
5.2.2	Discussion sur les résultats expérimentaux . . . . .	117
5.3	Modélisations . . . . .	120
5.3.1	Evolution des diagrammes de polarisation en champ magnétique (configuration Voigt) . . . . .	121
5.3.2	Poids des composantes brillantes pour les états noirs: intensité de photoluminescence. . . . .	123
5.3.3	Poids des composantes brillantes pour les états noirs: influence des facteurs de Landé $g_e$ et $g_h$ . . . . .	126
5.3.4	Etats propres en champ Faraday: influence des termes de couplage .	127
5.4	Conclusion . . . . .	129
<b>6</b>	<b>Spectroscopie des états chargés dans un système de 2 boîtes quantiques (molécule)</b>	<b>131</b>
6.1	Introduction . . . . .	132
6.2	Spectroscopie des états chargés dans une boîte quantique unique . . . . .	133
6.2.1	Cas des boîtes InAs/GaAs . . . . .	133
6.2.2	Cas des boîtes GaAs/AlGaAs . . . . .	134
6.2.3	Résultats expérimentaux: boîtes uniques dans une structure n-i Schottky . . . . .	135
6.2.4	Système à deux boîtes quantiques (QDM) dans une structure Schottky	138
6.3	Résultats expérimentaux: QDM dans une structure n-i Schottky . . . . .	141
6.3.1	Paramètres de l'échantillon . . . . .	141
6.3.2	Caractérisation de l'échantillon (PL) . . . . .	142
6.3.3	Evolution des états chargés avec la tension électrique . . . . .	146
6.3.4	Etudes résolues en polarisation . . . . .	150
6.3.5	Identification des raies. Complexes excitoniques dans les boîtes . . .	153
6.4	Conclusion . . . . .	159
<b>7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>161</b>
	<b>Bibliography</b>	<b>165</b>



# Liste des figures

1.2.1 Structure de bandes dans un semiconducteur massif III-V et dans un puits quantique au voisinage de $\vec{k} = 0$ . . . . .	21
1.3.1 Densité des états électroniques dans les structures confinées . . . . .	23
1.3.2 Structure de bandes d'une boîte quantique GaAs/AlGaAs . . . . .	23
1.3.3 Structure de bande d'une boîte quantique InAs/GaAs. . . . .	24
1.4.1 Représentation graphique des deux types d'excitons. . . . .	26
1.4.2 Structure des états des excitons brillants dans une boîte symétrique . . . .	28
1.4.3 Structure des états des excitons brillants dans une boîte non symétrique . .	30
1.4.4 Schéma des états propres excitoniques en fonction de l'interaction d'échange.	31
1.4.5 Représentation de trions positif et négatif. . . . .	32
1.4.6 Transitions optiques du biexciton. . . . .	32
2.1.1 Modélisation de la croissance des boîtes auto-assemblées . . . . .	37
2.1.2 Image AFM des boîtes InAs avant le dépôt de la couverture de GaAs, image STM d'une boîte coupée dans le plan transverse . . . . .	37
2.1.3 Principe de la croissance de gouttelettes . . . . .	38
2.1.4 Images X-STM des profils latéraux de 4 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs droplet . . . . .	40
2.1.5 Etapes de croissance des boîtes quantiques dans les nanotrous . . . . .	41
2.1.6 Variation du spectre de microphotoluminescence de boîtes quantiques dans des nanotrous en fonction de l'épaisseur nominale de GaAs; Energie d'émission des boîtes quantiques en fonction de l'épaisseur nominale de GaAs . . . . .	42
2.1.7 Images AFM et profils statistiques selon les directions cristallographiques 110 et -110 . . . . .	42
2.1.8 Images AFM de la topographie correspondant à trois nanotrous et leurs profils . . . . .	43
2.1.9 Spectres de photoluminescence et FSS associés aux boîtes de la figure 2.1.8	44
2.2.1 Image MEB d'un masque optique de la forme d'un carré. . . . .	46
2.2.2 Images MEB de deux trous avec les diamètres nominaux 1 et 2 $\mu m$ . . . .	46
2.2.3 Effet des méthodes de lithographie positive et négative . . . . .	47



2.2.4 Schéma de la structure de bandes d'un échantillon de boîtes quantiques dans une diode n-i Schottky . . . . .	48
2.2.5 Image d'un échantillon avec une grille de contact arrière . . . . .	49
2.2.6 Image d'un échantillon avec une grille de contact arrière et les contacts de face avant avec des masques optiques . . . . .	50
2.2.7 Image d'un échantillon après toutes les étapes de fabrication - le contact arrière, les contacts de face avant avec des masques optiques et les reports de contact. . . . .	51
2.2.8 Caractéristiques I-V pour deux diodes différentes, à la température ambiante.	51
2.2.9 Caractéristiques I-V de cinq diodes Schottky connectés un par un sans éclairage et avec la lumière d'une lampe de poche . . . . .	52
2.2.10 Caractéristiques I-V de diodes Schottky à la température ambiante et à 10K pour 4 diodes . . . . .	53
2.3.1 Emplacement de l'échantillon dans le cryostat avec circulation fermée d'hélium	54
2.3.2 Schéma général du montage expérimental (cryostat avec circulation fermée d'hélium) . . . . .	55
2.3.3 Stack 3d de contrôleurs piezoélectriques Attocube monté sur une canne porte-échantillon, avec une lentille asphérique montée dans un support en cuivre . . . . .	57
2.3.4 Schéma général du montage expérimental (cryostat Spectromag) . . . . .	58
3.2.1 Poids relatif $\lambda_{LH}^2 = \beta^2 + \gamma^2$ des composantes LH de l'état fondamental de trou pour trois types de boîtes . . . . .	71
3.3.1 Diagrammes de polarisation des états propres . . . . .	73
3.3.2 Modélisation d'un diagramme de polarisation . . . . .	75
3.4.1 Spectre de photoluminescence de l'échantillon InAs avec le faisceau du laser centré sur une boîte . . . . .	77
3.4.2 Exemple de spectre de microphotoluminescence résolue en polarisation . .	77
3.4.3 Exemple de spectres de microphotoluminescence résolue en polarisation pour une boîte avec un faible $\delta_1$ . . . . .	78
3.4.4 Intensité de l'émission polarisée de différentes boîtes quantiques en fonction de l'angle d'analyse . . . . .	79
3.5.1 Un spectre de photoluminescence de l'échantillon (1) avec des boîtes GaAs/AlGaAs synthétisées par nanotrous. Excitation à 638 nm avec la puissance 40 $\mu W$ .	81
3.5.3 Distribution du paramètre $\beta$ . . . . .	84
3.5.4 Distribution du paramètre $\psi$ . . . . .	85
3.5.5 Distribution des paramètres $\phi_x$ (a) et $\phi_y$ (b) pour les boîtes GaAs/AlGaAs.	85
3.5.6 Paramètre du mélange $\beta$ en fonction de l'énergie d'émission et du $\delta_1$ . . . .	86
3.5.7 Histogramme du paramètre $\beta$ . . . . .	87

4.2.1	Structure fine de l'exciton sans champ et sous champ Faraday. . . . .	95
4.2.2	Structure fine de l'exciton sans champ et sous champ Voigt. . . . .	97
4.4.1	Série en champ magnétique d'une boîte quantique InAs. . . . .	100
4.5.1	Spectre de photoluminescence sous champ en configuration Faraday. . . . .	103
4.5.2	Série en champ magnétique (configuration Voigt) de la photoluminescence d'une boîte quantique GaAs/AlGaAs. . . . .	108
4.5.3	Ajustements pour 8 sur 9 boîtes (1 à 8 du tableau 4.10). . . . .	110
5.2.1	Spectre de luminescence d'une boîte GaAs/AlGaAs en fonction du champ magnétique. Analyse de la polarisation pour une boîte GaAs/AlGaAs. . .	116
5.2.2	Spectres de photoluminescence et diagrammes de polarisation correspon- dants. . . . .	117
5.2.3	Spectres de photoluminescence et diagrammes de polarisation correspon- dants. . . . .	118
5.2.4	Spectres de photoluminescence et diagrammes de polarisation correspon- dants. . . . .	118
5.2.5	Spectres de photoluminescence et diagrammes de polarisation correspon- dants. . . . .	119
5.3.1	Diagrammes de polarisation de l'émission des 4 états excitoniques pour les valeurs de champ magnétique de 0 à 10T. . . . .	122
5.3.2	Modélisation des diagrammes de polarisation pour une boîte GaAs/AlGaAs.	123
5.3.3	Modélisation du poids des états $\{ +1\rangle,  -1\rangle,  +2\rangle,  -2\rangle\}$ pour les états DL et DH. . . . .	124
5.3.4	Modélisation du poids des états $ +1\rangle,  -1\rangle$ pour les états DL et DH, pour deux combinaisons de valeurs des facteurs de Landé. . . . .	126
5.3.5	Modélisation des énergies des états $ BH\rangle,  BL\rangle,  DH\rangle,  DL\rangle$ en configura- tion de champ magnétique Faraday, sans contribution du décalage diamag- nétique. . . . .	127
5.3.6	Modélisation des énergies des états $ BH\rangle,  BL\rangle,  DH\rangle,  DL\rangle$ en configu- ration de champ magnétique Faraday, avec la contribution du décalage diamagnétique $\kappa_z = 10\mu eV/T^2$ . . . . .	128
6.2.1	Spectre en code couleur de photoluminescence d'une boîte quantique InAs/GaAs en fonction de la tension appliquée . . . . .	133
6.2.2	Spectre en code couleur de photoluminescence pour une boîte quantique GaAs/AlGaAs droplet en fonction de la tension appliquée . . . . .	135
6.2.3	Trois spectres de photoluminescence en fonction de la tension électrique appliquée, pour trois boîtes différentes ( $\lambda_{exc} = 532nm, P = 150\mu W$ ). . . . .	137
6.2.4	Spectres de photoluminescence en fonction de la tension électrique ap- pliquée, pour la même boîte et trois puissances d'excitation différentes. . .	138

6.2.5	Schéma des anticroisements des électrons et des trous dans une QDM . . .	139
6.2.6	Spectroscopie des niveaux d'énergie (LACS) . . . . .	140
6.2.7	Spectroscopie des niveaux d'énergie (LACS) . . . . .	141
6.3.1	Diagramme des bandes de la structure n-i-Schottky pour le système de deux boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Les couleurs correspondent à: vert - n+ GaAs, bleu - i-GaAs, rouge - AlGaAs. . . . .	143
6.3.2	Compilation de spectres de photoluminescence pris sur un morceau d'échantillon non traité (sans contacts). . . . .	144
6.3.3	Structure de bandes pour deux puits quantiques dans le régime "flat-band" (modélisation) . . . . .	145
6.3.4	Spectres de luminescence enregistrés sur un trou de $2 \mu m$ en diamètre pour deux longueurs d'onde d'excitation. . . . .	147
6.3.5	Schéma d'excitation et de piégeage des électrons et de trous pour une ex- citation à 532 et 638 nm . . . . .	147
6.3.6	Spectres de luminescence enregistrés sur deux trous de 2 et 4 $\mu m$ en di- amètre pour deux longueurs d'onde d'excitation ( $\lambda_{exc} = 532nm, P = 10\mu W$ ). 148	148
6.3.7	Spectres de luminescence enregistrés sur un trou de 2 $\mu m$ en diamètre pour deux puissances d'excitation ( $\lambda_{exc} = 532nm$ ). . . . .	150
6.3.8	(a) Spectres de photoluminescence pour 5 puissances différentes pour une tension de 0,5 V. (b) Spectres de photoluminescence pour la même ouver- ture avec une puissance fixe de 10 $\mu W$ et une tension variable entre 0,46 et 0,5 V. . . . .	151
6.3.9	Spectre de photoluminescence pour deux angles d'analyse orthogonaux, pris pour une tension de 0,6 V et la puissance d'excitation de 10 $\mu W$ . . . .	151
6.3.10	(a)(c) Spectres de photoluminescence à deux puissances d'excitation dif- férentes, (b)(d) Schéma de raies en code couleur, montrant la présence de splitting de structure fine . . . . .	152
6.3.11	(a) Spectre de photoluminescence pour une ouverture de 2 $\mu m$ en diamètre obtenu avec une excitation à 532 nm (10 $\mu W$ ), (b) schéma des raies en code couleur, montrant la présence de splitting de structure fine . . . . .	153
6.3.12	Spectre de photoluminescence pour une QDM InAs/GaAs . . . . .	154
6.3.13	Ajustement de la raie 2 de la figure 6.3.11 . . . . .	156
6.3.14	Schéma de niveaux de trous S dans une QDM pour trois valeurs de tension appliquée . . . . .	156
6.3.15	Modélisation de l'anticroisement entre états S pour 3 épaisseurs de la bar- rière, pour une QDM présentée sur la figure 6.3.12. . . . .	158
6.3.16	Valeur du paramètre de couplage W en fonction de l'épaisseur de la barrière (modélisation). . . . .	158

# Liste des tableaux

1.1	Les masses effectives au voisinage du point $\Gamma$ à 300 K pour GaAs, InAs et AlGaAs . . . . .	21
1.2	Etats excitoniques et énergies associées. . . . .	29
3.1	Tableau récapitulatif des paramètres de mélange obtenus pour 8 boîtes quantiques InAs/GaAs. . . . .	79
3.2	Composition des échantillons de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs utilisés pour nos études du paramètre de mélange HH-LH. . . . .	81
3.4	Tableau récapitulatif des paramètres de mélange obtenus pour 23 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs sur l'échantillon (1). . . . .	82
4.1	Etats propres pour les boîtes avec la symétrie $D_{2d}$ en champ Faraday . . .	94
4.2	Etats propres pour les boîtes avec la symétrie $< D_{2d}$ en champ Faraday . .	95
4.3	Etats propres pour les boîtes avec la symétrie $< D_{2d}$ en champ Voigt . . .	96
4.4	Etats propres pour les boîtes avec la symétrie $< D_{2d}$ en champ Voigt . . .	97
4.5	Tableau récapitulatif des résultats sur 10 boîtes quantiques InAs/GaAs en configuration de champ Voigt. . . . .	101
4.6	Tableau récapitulatif des résultats sur 17 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs en configuration de champ Faraday. . . . .	104
4.7	Comparaison des valeurs de $g_z$ de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs. . . . .	105
4.8	Comparaison des valeurs de $\delta_1(\mu eV)$ de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs . . . . .	106
4.9	Comparaison de la valeur de $\kappa_z$ de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs. . . . .	107
4.10	Tableau récapitulatif des résultats sur 9 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs en configuration de champ Voigt. . . . .	109
4.11	Comparaison des valeurs de $\delta_1$ obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs . . . . .	109

4.12	Comparaison des valeurs de $\delta_0$ obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs . . . . .	111
4.13	Comparaison des valeurs de $\delta_2$ obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs . . . . .	111
4.14	Comparaison des valeurs de $\kappa_x$ obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs et pour les boîtes quantiques InAs/GaAs . . . . .	111
6.1	Paramètres de l'échantillon avec des boîtes quantiques uniques GaAs/AlGaAs dans une structure n-i Schottky étudié dans ce chapitre. . . . .	136
6.2	Paramètres de l'échantillon avec des QDM GaAs/AlGaAs dans une structure n-i Schottky étudié dans ce chapitre. . . . .	142
6.3	Valeurs des splittings de structure fine pour les raies sur la figure 6.3.9. . .	152
6.4	Valeurs des paramètres obtenus par modélisation de 6 raies associées aux anticroisements, utilisant l'expression 6.3.2. . . . .	155

# Acknowledgements

In this preface that I'm writing after defending my thesis I would to thank all those who I met during my work.

First of all, I would like to thank the jury members who participated in the thesis defence: Dr. H el ene Carr ere and Prof. David Ferrand for agreeing to be the referees of my thesis, as well as Prof. Abhay Shukla and Dr. Julien Houel for being the examiners.

I would like to thank Dr. Christophe Testelin who directed my thesis work. His expertise and immense scientific knowledge have been the key to success in this work. Thank you for spending lots and lots of time correcting my orthography (and I don't know how you found this time - I hope you haven't secretly invented a time machine, because it would be a shame to hide it from scientific society).

Also, a very special thanks goes to Dr. Beno t Eble, my thesis co-supervisor, for very precious and fruitful discussions during all the period of the thesis, and also those long evenings (and sometimes saturdays) with our "beloved" magnetic cryostate. Thank you, Beno t, for all that energy and passion that inspired me when things didn't go too well.

I would like to thank all the Nanost team, directed by Dr. Catherine Gourdon, the team that I made a part of, for an excellent atmosphere and spirit. In particular, I would like to thank Dr. Richard Hostein, Prof. Valia Voliotis, Prof. Maria Chamarro for our numerous discussions and meetings that helped me to understand many crucial concepts.

All the experimental work that I've done would have been impossible without engineers and their magic. I would like to thank Mathieu Bernard for his great expertise in cryogenics, for all that assistance he provided to us during our experiments and during their preparation. Also I would like to thank Fran ois Breton and Silb e Majrab for realization of microchips and other electronic devices crucial for our experiments, as well as Florent Margaillan for his expertise optics and his excellent knowledge of lasers and for great help with our experimental setup.

I would like to thank the clean room team and Dr.Loic Becerra in particular. I've lost count of how many days we spent together in the clean room preparing numerous samples and doing multiple steps of samples fabrication.

This list would be incomplete without other fellow doctorants (some of which are already doctors, and some are still going to defend). I would like to thank Leonard Monniello, Sylvain Shihab and Bruno Siarry (I remember being smashed in chess by all three of you when we played first, when I was in my first year, and I've definitely improved since then!). I would also like to thank and wish good luck to other doctorants who are still preparing for their thesis defences: Antoine, Carolina, Suzanne, Romain, Piotr.

Finally, I would like to wholeheartedly thank my family for their endless support.

# Introduction

Aujourd’hui, les semiconducteurs jouent un rôle essentiel dans l’industrie et de nombreux appareils électroniques à base de semiconducteur sont présents dans notre vie quotidienne: les ordinateurs de bureau, les tablettes, les “smartphones”, écran plan, capteurs. . . . Ceci est le résultat des études fondamentales qui ont permis de comprendre les propriétés des semi-conducteurs, telles que la structure de bande, les propriétés de transport ou la photoluminescence, et des études plus appliquées qui ont eu lieu au cours de nombreuses décennies.

Pendant les années 50, les techniques de croissance épitaxiale de semiconducteurs se sont développées et ont permis l’avènement des transistors à effet de champ au début des années 60 et la naissance des ordinateurs modernes. Dans les années 70-80, le développement des techniques de croissance par épitaxie par jets moléculaires a notamment permis d’obtenir des structures de taille comparable à la longueur d’onde de de Broglie des électrons, permettant d’étudier les effets du confinement dans une direction de l’espace : le puits quantique. Sont ainsi apparus les lasers à base de puits quantiques dans les années 70, et au fil des progrès techniques des composants et dispositifs opto-électroniques de plus en plus performants.

Autour des années 80, les premières nanostructures présentant un effet de confinement dans les trois directions de l’espace ont commencé à apparaître. Il s’agit des boîtes quantiques de semiconducteur. Le confinement électronique conduit à une discrétisation de leur spectre d’énergie et à des nouvelles propriétés électroniques. Du fait de leur taille nanométrique et de cette discrétisation, elles sont souvent appelées “atomes artificiels”. Les effets de confinement électronique ont été mis en évidence une première fois par Eki-mov et Onushchenko en 1984-1985 dans des boîtes quantiques à base de matériaux II-VI ou I-VII [1, 2]. Ces boîtes quantiques avaient été obtenues par un procédé de fabrication faisant appel à la formation de verres contenant des nanocristaux de semiconducteur. Des méthodes de chimie en solutions ont pu être utilisés plus tard pour obtenir des nanocristaux de matériaux II-VI, principalement, avec une bonne maîtrise de la taille et de l’état de la surface et ouvrant ainsi une large palette de domaines d’applications allant de l’imagerie médicale [3] aux dispositifs photoniques tels que les diodes laser [4].



Dans le même temps, au début des années 80, Richard Feynman propose d'utiliser des états quantiques de la matière pour réaliser des ordinateurs extrêmement puissants [5]. L'idée est de remplacer les bits classiques (0 ou 1) par des bits quantiques (qubits), constitués par des systèmes à deux niveaux discrets, susceptibles d'être initialisés dans une superposition cohérente. Cette idée fut renforcée par Peter Shor [6], en 1995, lorsque fut proposé le premier algorithme de calcul quantique. Un nouveau domaine venait de naître, celui de l'information quantique. Parmi les qubits potentiels (ions [7], jonctions Josephson [8], photons polarisés [9]...), les boîtes quantiques semiconductrices ont été alors proposées comme briques élémentaires de l'information quantique, capable de porter des qubits.

En 1985, il est mis en évidence, également, la possibilité d'obtenir par épitaxie à jets moléculaires des îlots tridimensionnels d'InAs lorsqu'une couche mince d'InAs est déposée sur GaAs grâce au mode de croissance connue sous le nom de Stranski-Krastanov [10]. C'est ainsi qu'apparaît une nouvelle méthode pour obtenir des boîtes quantiques dites «auto-assemblées» qui ont été très étudiées au cours des 30 dernières années. Elles ont permis de réaliser des expériences pionnières dans le domaine de l'optique quantique ou de l'information quantique à base des systèmes confinés en matière condensée. Nous citerons ainsi l'observation de l'émission de photons uniques [11], la génération de photons indiscernables [12], les oscillations de Rabi [13], le couplage fort avec une cavité semiconductrice [14,15], l'intrication photon-spin [16]...

Cependant, les boîtes quantiques auto-assemblées présentent plusieurs inconvénients pour des applications futures dans les technologies quantiques. Du fait de la nature stochastique de leur croissance, la taille, la forme et la composition des boîtes sont mal contrôlées. De plus, les contraintes ne sont pas entièrement relaxées et celles qui subsistent ont des conséquences importantes sur leurs propriétés de spin et sur leur photoluminescence. Les variations de la taille et de la composition d'une boîte à une autre conduisent à une variabilité de la structure électronique et ainsi qu'à une dispersion des propriétés optiques d'un ensemble de boîtes auto-assemblées. Enfin, leur position ne peut pas être choisie préalablement sur un substrat, ce qui empêche leur intégration à grande échelle.

Des boîtes quantiques sans contrainte apparaissent naturellement aux interfaces entre les couches de GaAs et d'AlGaAs dans les puits quantiques en raison de fluctuations d'épaisseur. Ces boîtes quantiques présentent un très faible confinement d'électrons. Elles ont été étudiées principalement à la fin des années 90 et début des années 2000 et nous retiendrons parmi les résultats les plus marquants : la mise en évidence d'une structure fine de l'exciton [17], des effets associés au spin nucléaire [18] et aussi la démonstration d'une porte logique quantique [19].

Pour obtenir des boîtes quantiques sans contrainte, des techniques différentes, comme l'épithaxie utilisant des gouttelettes, ont été développées. Cependant, les faibles températures de croissance utilisées pour ce type de synthèse provoquent l'incorporation de défauts cristallins et d'impuretés. Plus récemment, une variante a été développée, tirant profit de la possibilité de créer des nanotrous par gravure locale in-situ à l'aide de gouttelettes et recuit à une température adaptée [20]. Il est ensuite possible d'utiliser ces nanotrous pour fabriquer des boîtes de GaAs/AlGaAs non-contraintes. Cette approche "in situ", avec fabrication de nanotrous lors de la croissance, peut également être remplacée par une approche "ex-situ", avec fabrication de nanotrous par lithographie. Cette méthode offre en particulier la possibilité de réaliser des réseaux de boîtes quantiques et de contrôler leur positionnement, en vu d'étapes technologiques ultérieures [21, 22].

C'est l'approche "in situ" qui a été choisie dans ce travail de thèse pour fabriquer des boîtes quantiques très uniformes et non contraintes dans des trous prédéfinis. Les échantillons ont été réalisés à l'Institut des Nanosciences de Paris par Paola Atkinson. La gravure locale définit la densité et le diamètre des trous et le remplissage du trou définit de façon indépendante l'énergie d'émission des boîtes quantiques obtenues. Ces boîtes quantiques pourraient être facilement intégrées dans des dispositifs optoélectroniques, ouvrant ainsi la possibilité d'une plate-forme de technologie intégrée sur puce.

Ce travail de thèse est consacré à la caractérisation de ces nouvelles boîtes et à la mise en évidence de la possibilité de leur utilisation dans le cadre de l'information quantique. C'est ainsi que nous allons étudier le mélange des états de valence de trous lourds et légers et la structure fine de la paire électron-trou confinée (exciton). Dans les boîtes sous contrainte, les valeurs de ces paramètres sont importantes et sont associées à la présence de contraintes qui introduit des termes d'anisotropie dans la boîte quantique. La présence de mélange et d'une structure fine de l'exciton sont des situations défavorables lorsqu'on pense à l'utilisation de boîtes quantiques comme qubit ou comme sources de photons uniques indiscernables.

Nous présentons également des premiers résultats sur des molécules de boîtes quantiques fabriquées à partir de la même méthode par remplissage en deux temps du nanotrou avec du GaAs et dépôt d'une couche barrière entre les deux boîtes quantiques. Les opérations logiques dans le cadre de l'information quantique ont besoin d'opérations à un seul qubit mais également imposent l'utilisation de plusieurs qubits qui interagissent de façon cohérente. Le contrôle électronique du couplage entre deux boîtes quantiques est ainsi un premier pas vers la réalisation de portes à deux qu-bits.

Cette thèse est divisée en six chapitres.

Le premier chapitre présente les notions de base sur les propriétés des semiconducteurs et des boîtes quantiques. Les effets du confinement sont discutés et les états exci-

toniques sont décrits en incluant les processus coulombiens à l'origine de la structure fine des excitons, qui fera l'objet d'études expérimentales dans les chapitres suivants.

Le deuxième chapitre est dédié aux techniques et dispositifs expérimentaux. Les méthodes de croissance sont présentées ainsi qu'une description détaillée de la méthode de remplissage de nanotrous. La préparation des échantillons pour les expériences de micro-photoluminescence des boîtes uniques et les structures n-i-Schottky qui ont été utilisées dans cette thèse (chapitre 6) sont décrites. Les montages expérimentaux sont aussi présentés. Au cours de la thèse, trois montages ont été utilisés ou développés : Un de ces montages comprend un cryostat avec un cycle fermé d'hélium développé à l'INSP. Ce cryostat offre une stabilité permettant des séries expérimentales sur des boîtes uniques avec une durée de plusieurs jours. Deux autres montages ont permis l'obtention de la micro-luminescence de boîtes quantiques ou la micro-luminescence sous champ magnétique transverse ou longitudinal (jusqu'à 8 T).

Le troisième chapitre est consacré aux études du mélange des bandes de trous lourds et trous légers dans les boîtes GaAs/AlGaAs non-contraintes. Les valeurs des paramètres de mélange sont extraits, et ces résultats sont comparés avec des résultats obtenus dans les boîtes InAs/GaAs. Les différents facteurs qui jouent un rôle dans la détermination de la valeur de ces paramètres sont discutés, ainsi que leurs contributions relatives.

Le quatrième chapitre présente nos résultats sur les paramètres magnéto-optiques de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs non-contraintes. Dans la configuration de champ longitudinal, nous trouvons la valeur des facteurs de Landé  $g$  de l'exciton. La configuration du champ magnétique transverse permet de mesurer les facteurs  $g$  de l'électron et du trou et aussi de déterminer les valeurs de termes d'échange pour les états d'exciton "noirs" et "brillants".

Dans le cinquième chapitre, nous continuons les études des états d'exciton "noirs" sous champ magnétique. Nous nous intéressons à la polarisation des états d'exciton "noirs" et "brillants" et trouvons un comportement surprenant des branches noires. Pour expliquer ce comportement, nous invoquons un modèle théorique qui introduit des termes de couplage entre les états d'exciton "noirs" et "brillants".

Finalement, le chapitre six présentera des résultats préliminaires de spectroscopie des états d'excitons couplés dans un système de deux boîtes quantiques ("molécule") alignées verticalement. L'évolution de la luminescence en fonction du champ électrique sera présentée. En utilisant ces résultats avec des études en polarisation, nous discuterons les raies observées dans les spectres.

# Chapitre 1

## Propriétés fondamentales des boîtes quantiques

## 1.1 Boîtes quantiques

Une boîte quantique est une structure où les porteurs sont confinés dans les trois directions spatiales. Le confinement spatial discrétise alors les niveaux d'énergie dans la boîte quantique; pour cette raison, les boîtes quantiques sont parfois nommées "atomes artificiels". Typiquement, les boîtes quantiques ont une taille latérale dans le plan de croissance ( $\sim 15$ - $20$  nm de diamètre pour les boîtes étudiées dans cette thèse) grande devant leur épaisseur ( $2$ - $4$  nm) selon l'axe de croissance (une forme qui ressemble à une lentille et dépend de la méthode de croissance). Ceci implique que le confinement hors du plan est beaucoup plus fort, et les états discrets de plus basse énergie sont généralement associés au confinement selon l'axe de croissance.

## 1.2 Structure de bandes pour les électrons et les trous

L'équation de Schrödinger pour un électron dans un semiconducteur massif s'écrit:

$$\hat{H}\Psi(\vec{r}) = \left\{ \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 + U(\vec{r}) \right\} \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}). \quad (1.2.1)$$

$U(\vec{r})$  est un potentiel périodique ( $U(\vec{r}) = U(\vec{r} + \vec{a})$ ) où  $\vec{a}$  est un vecteur de maille). Le théorème de Bloch indique que si le potentiel est périodique, les états propres peuvent être représentés comme le produit d'une fonction enveloppe et d'une fonction périodique (fonction de Bloch). L'expression pour les états propres s'écrit alors

$$\psi_{n\vec{k}} = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}), \quad (1.2.2)$$

où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde et  $n$  est le numéro de bande. La fonction de Bloch  $u_{n\vec{k}}(\vec{r})$  a la même période que le potentiel ( $u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n\vec{k}}(\vec{r} + \vec{a})$ ). L'énergie  $E_n(\vec{k})$  dépend de  $\vec{k}$  et  $n$ .

En général, l'expression de la dispersion de l'énergie des porteurs est assez compliquée. Dans le cadre de cette thèse, nous allons étudier principalement (Al)GaAs et InAs qui sont des semiconducteurs avec un gap direct, et nous limiter au centre de la zone de Brillouin (où la dispersion de  $E_n(\vec{k})$  est quadratique). La structure de bandes d'un semiconducteur III-V massif au voisinage du centre de zone est schématisée dans la figure 1.2.1. La bande  $\Gamma_6$  associée aux électrons de conduction  $|J = 1/2, m_j = \pm 1/2\rangle$  est écartée des bandes de valence par une bande interdite de largeur  $E_{gap}$ . Les bandes de valence  $\Gamma_8$  sont 4 fois dégénérées, avec des états électroniques  $|J = 3/2, m_j = \pm 1/2, \pm 3/2\rangle$ , et une bande split-off  $\Gamma_7$  ( $|J = 1/2, m_j = \pm 1/2\rangle$ ) écartée des bandes  $\Gamma_8$  par l'interaction spin-orbite. Pour la bande  $\Gamma_8$ , on utilisera la convention "états de trou", avec  $m_h = -m_j$ ,  $m_j$  étant associé

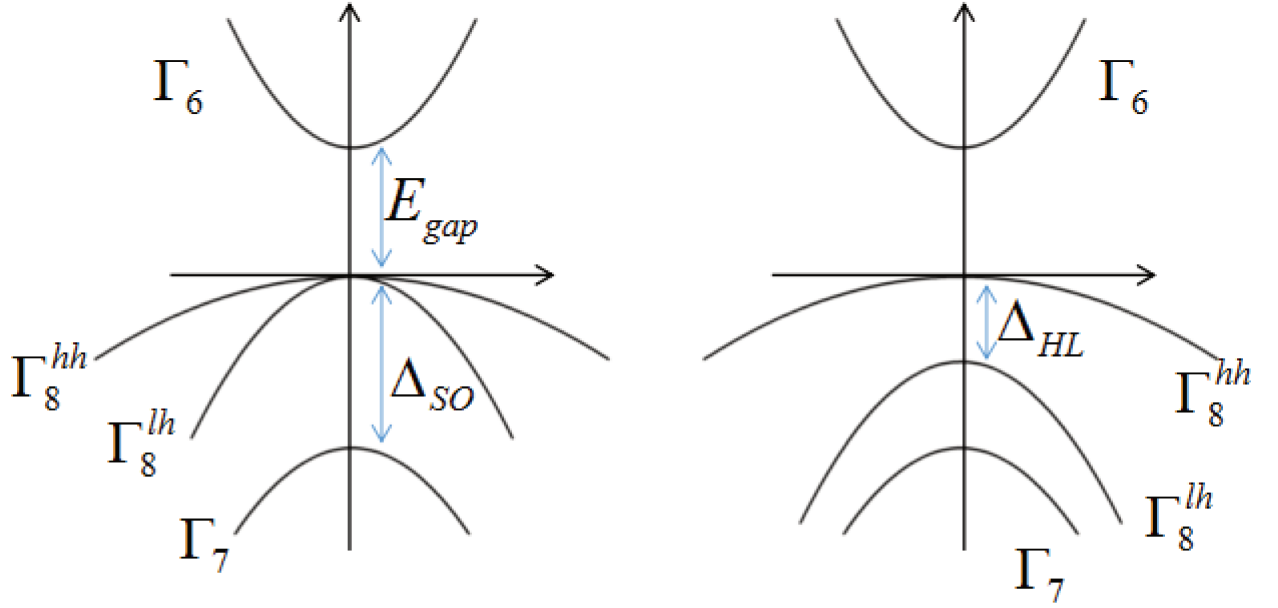


Figure 1.2.1: Structure de bandes dans semiconducteur massif III-V (gauche) et dans un puits quantique (droite) (au voisinage de  $\vec{k} = 0$ ).

à l'état électronique de valence vide.

Au voisinage du point  $\Gamma(\vec{k} = 0)$ , dans l'approximation parabolique, la masse  $m^*$  est la masse effective des porteurs (électrons). Dans un cristal, elle est différente de la masse d'un électron libre. Elle est définie par l'expression

$$m^* = \left( \frac{1}{\hbar^2} \frac{d^2 E}{dk^2} \right)^{-1}. \quad (1.2.3)$$

Les masses effectives (en masse de l'électron libre), dans les semiconducteurs qui sont considérés dans cette thèse, sont données dans le tableau ci-dessous [23]:

Matériau	$m_e^*$	$m_{hh}^*$	$m_{lh}^*$
<i>GaAs</i>	0.063	0.51	0.082
<i>InAs</i>	0.023	0.41	0.026
<i>AlAs</i>	0.146	0.76	0.15

Table 1.1: Les masses effectives au voisinage du point  $\Gamma$  à 300 K pour *GaAs*, *InAs* et *AlGaAs* [23–26], en unité de masse de l'électron  $m_0 = 9.1 \cdot 10^{-31}$  kg.

Pour un alliage  $Al_x Ga_{1-x} As$  et des concentrations d'aluminium de moins de  $x=45\%$ , on peut faire une approximation linéaire des masses effectives [27]. Par exemple, la formule de la masse effective de l'électron pour différents pourcentages d'aluminium est alors  $m_{AlGaAs} = 0.063 + 0.083x$ ; l'énergie de gap au point  $\Gamma$ , à 300 K, peut être modélisée par la formule  $E_{Al_x Ga_{1-x} As}^\Gamma = 1.425 + 1.155x + 0.37x^2$  [28–30].

## 1.3 Confinement spatial

Les porteurs de charge peuvent être associés à leur longueur de de Broglie, donnée par l'expression

$$\lambda_{deB} = \frac{h}{\sqrt{2\pi m^* k_B T}}. \quad (1.3.1)$$

Dans les semiconducteurs, les longueurs d'onde de de Broglie pour les électrons à la température de l'hélium liquide (4K) sont typiquement des dizaines de nanomètres. Si une ou plusieurs dimensions de la structure sont comparables à cette valeur, il apparaît un confinement spatial qui modifie les niveaux d'énergie et la densité des états électroniques. Dans les semiconducteurs massifs, la densité d'états est proportionnelle à  $\sqrt{E}$ . Dans un puits quantique, les porteurs sont confinés dans une direction, et la densité d'états est indépendante de l'énergie pour chaque bande confinée. Dans un fil quantique, les porteurs sont confinés selon deux directions spatiales et la densité d'états est proportionnelle à  $\frac{1}{\sqrt{E}}$ . Finalement, dans le cas où le confinement se fait selon les trois directions spatiales, les niveaux d'énergie sont complètement discrétisés. Dans la figure 1.3.1, on voit comment change la densité des niveaux électroniques pour les structures 3D (semiconducteur massif), 2D (puits quantique), 1D (fil quantique) et 0D (boîte quantique).

Les structures de bandes pour les boîtes quantiques peuvent être représentées par un des modèles suivants: un potentiel cubique (confinement par des barrières finies ou infinies selon les trois axes de l'espace), une barrière sphérique, ou par un potentiel harmonique. Une approche communément utilisée est d'approximer le confinement selon l'axe de croissance Oz avec un puits quantique et considérer le premier état confiné; ensuite, le confinement dans le plan xOy est modélisé par un potentiel parabolique. Les solutions pour les niveaux d'énergie sont nommées similairement aux niveaux d'énergie de l'électron dans un atome (états S, P, D...). Le résultat du calcul des états propres et des énergies propres dépend du modèle choisi, mais l'introduction d'un confinement spatial à 3 dimensions a toujours les conséquences suivantes: la densité d'états a la forme d'une série de pics de Dirac (discrétisation de la densité d'états), le gap effectif augmente, et la force d'oscillateur associée à la recombinaison radiative augmente.

En pratique, la réalisation de structures confinées consiste à faire croître des couches de semiconducteurs avec des énergies de gap différentes. Ceci permet de réaliser des hétérostructures dans lesquelles la variation de la structure de bandes (conduction et valence) conduit à la formation de barrières de confinement. La taille de la boîte et la hauteur des barrières définissent le nombre des états confinés dans cette boîte. La figure 1.3.2 représente la section latérale d'une boîte quantique GaAs/AlGaAs réalisée à partir de couches AlGaAs et GaAs. Les énergies d'offset pour la bande de valence et la bande

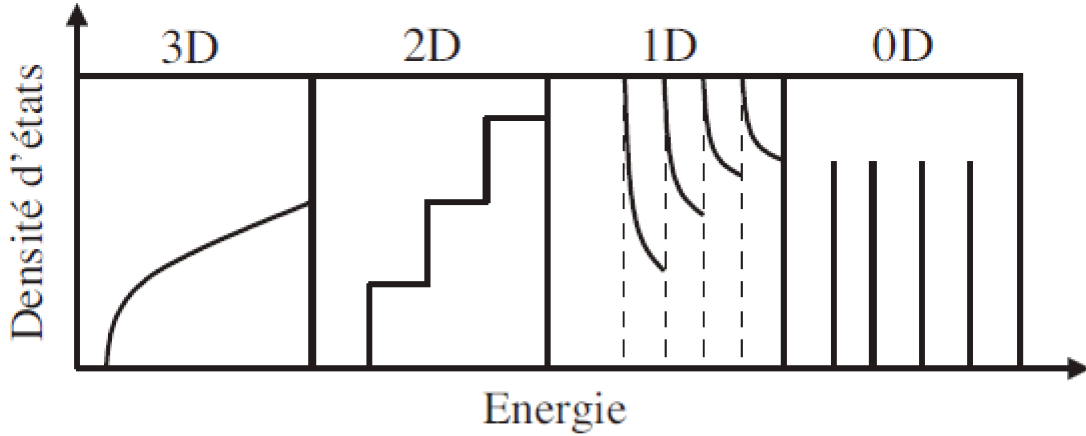


Figure 1.3.1: Densité des états électroniques dans les structures confinées

de conduction ont un ratio 28% et 72% respectivement [31].

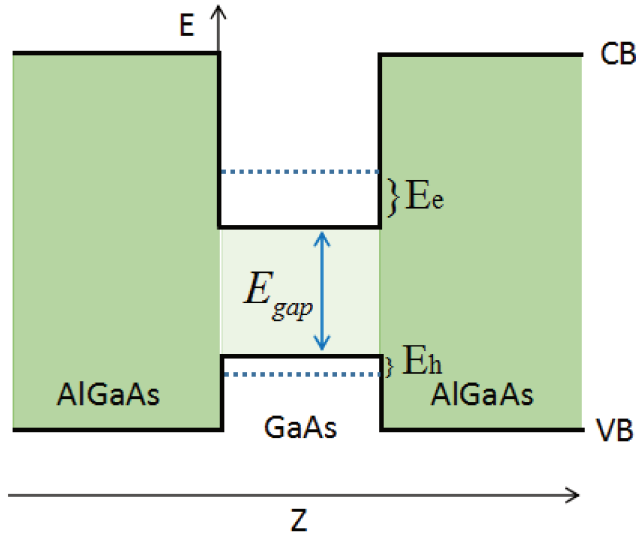


Figure 1.3.2: Structure de bandes d'une boîte quantique GaAs/AlGaAs

Les énergies de transition peuvent alors être présentées comme la somme  $E_e + E_h + E_{gap}$  où  $E_e$  et  $E_h$  sont des énergies propres dans la bande de conduction et la bande de valence,  $E_{gap}$  est l'énergie du gap. Notons aussi que la forme du puits est différente pour les boîtes GaAs/AlGaAs et InAs/GaAs. Les contraintes qui sont présentes dans les structures InAs/GaAs, et négligeables dans les structures GaAs/AlGaAs, déforment le potentiel, et la structure de bandes finale va avoir une forme similaire à celle calculée dans [32], ce qui est montrée sur la figure 1.3.3.

En l'absence des effets de contrainte, les deux bandes de valence (LH et HH) sont dégénérées au point  $\Gamma$  dans les semiconducteurs massifs tels que GaAs. Le confinement quantique lève la dégénérescence entre les états de trous lourds et de trous légers, l'énergie de bande des trous légers diminue relativement à celle des trous lourds.



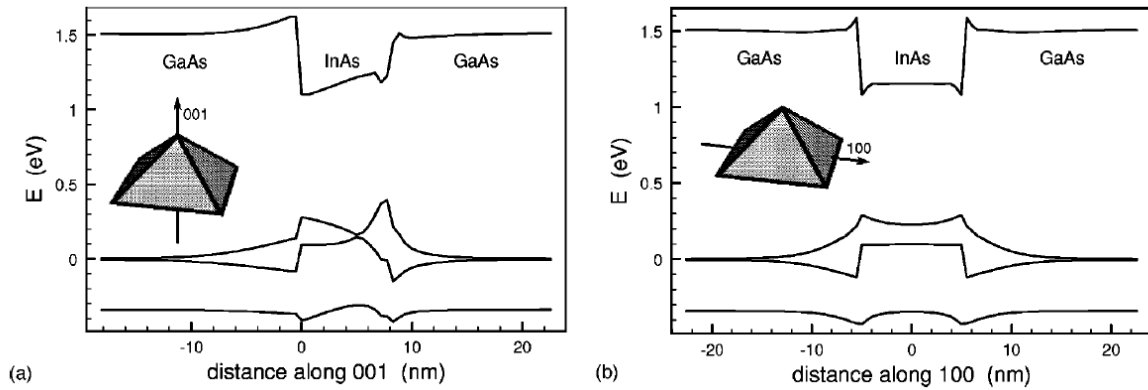


Figure 1.3.3: Structure de bande d'une boîte quantique InAs/GaAs. Image de l'article de Craig Pryor (1998) [32].

## 1.4 Etats excitoniques et transitions optiques

### 1.4.1 Photoluminescence

La photoluminescence est un processus d'émission de photons provoquée par une excitation lumineuse. Dans les semiconducteurs, cette photoluminescence a pour origine un mécanisme de relaxation radiative d'un électron de conduction vers un état vide de la bande de valence. Ce mécanisme est également interprété comme la recombinaison radiative d'une paire électron-trou, qui émet un photon dont l'énergie correspond à l'énergie de transition. Cette énergie est plus grande que l'énergie de gap du semiconducteur de la boîte quantique et permet d'accéder aux énergies de confinement. Cette technique expérimentale permet d'étudier les propriétés électroniques des nanostructures semiconductrices. Elle nécessite au préalable d'exciter des électrons vers la bande de conduction à l'aide d'une excitation lumineuse adaptée.

#### Excitation non résonante et résonante

Si l'énergie des photons de la source d'excitation (un laser, par exemple) est beaucoup plus grande que l'énergie du gap, les porteurs sont créés à haute énergie, au-delà du gap. Après plusieurs événements de relaxation (via les phonons), les porteurs photocréés se recombinent. Dans le cas des boîtes quantiques, les électrons peuvent être photoexcités dans la barrière, où sont créés des électrons de conduction et des trous de valence. Après relaxation, les porteurs sont piégés dans le potentiel de la boîte dans un des états discrets. Pendant les processus de relaxation, les électrons perdent l'information de leur polarisation initiale.

Une excitation résonante est réalisée avec une source d'excitation lumineuse dont

l'énergie est accordée avec l'énergie de transition de l'état excité dans une boîte quantique. Cette méthode permet d'obtenir un état avec une polarisation particulière et fixée par l'état de polarisation de la lumière incidente, qui peut être polarisée circulairement ( $\sigma^\pm$ ) ou linéairement (x/y) [33].

### 1.4.2 Exciton

L'exciton est une excitation élémentaire électronique mettant en jeu une transition entre états de valence et de conduction et les processus coulombiens. Dans un système à 0 K, la bande de valence est pleine et la bande de conduction est vide. Une transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction crée un trou dans la bande de valence et un électron dans la bande de conduction. L'interaction entre ces deux particules est alors régie par la loi de Coulomb  $V(r) = -e^2/\epsilon r$ , où  $\epsilon$  est la constante diélectrique statique et  $r$  est la distance entre l'électron et le trou. Pour les excitations proches du gap, l'interaction coulombienne est non négligeable, et un électron et un trou photocréés forment une paire liée qui s'appelle un exciton. C'est une quasi-particule avec un spin entier (c'est donc un quasi-boson). Les excitons ont généralement des forces d'oscillateur assez grandes. Un exciton ressemble à un atome d'hydrogène et la même logique peut être utilisée pour décrire ses niveaux d'énergie. Il y a alors deux particules - un électron avec une masse  $m_e$  et un trou avec une masse  $m_h$ . Dans un semiconducteur massif, l'énergie interne de l'exciton est donnée par

$$E(n) = -\frac{\mu e^4}{2\epsilon^2 \hbar^2 n^2}. \quad (1.4.1)$$

La différence avec la formule pour l'atome d'hydrogène est que la masse  $\mu$  utilisée dans cette expression est la masse réduite de l'exciton. On peut aussi introduire un équivalent à l'énergie de Rydberg pour l'exciton (la valeur pour l'atome d'hydrogène est  $R = 13.6eV$ ):

$$R_x = \frac{\mu e^4}{2\epsilon^2 \hbar^2} = \frac{\hbar^2}{2\mu a_B^2}. \quad (1.4.2)$$

Ici  $a_B$  est le rayon de Bohr de l'exciton ( $a_B = 0.53$  nm pour l'atome d'hydrogène). On peut diviser les excitons en deux types selon la valeur de leur rayon de Bohr. Si l'électron et le trou se trouvent dans la même cellule unité du cristal, on parle d'excitons de Frenkel, qui ont une énergie de liaison forte [34]. Le second type d'excitons correspond à un écart spatial entre l'électron et le trou plus grand, qui peut être égal à plusieurs tailles de cellules: ce sont les excitons de Wannier-Mott [35]. Dans les semiconducteurs, on a typiquement les excitons de Wannier-Mott, en raison des fortes constantes diélectriques

des matériaux (les rayons de Bohr sont de l'ordre de la dizaine de nm). Dans le GaAs massif, le rayon de l'exciton est ainsi de 11.6 nm et  $R_x = 4.8$  meV.



Figure 1.4.1: Représentation graphique des deux types d'excitons.

Dans un semiconducteur massif, l'énergie totale de l'exciton est la somme de l'énergie cinétique, l'énergie du gap et l'énergie interne de l'exciton:

$$E(n, \vec{k}) = \frac{\hbar^2}{2M} |\vec{k}|^2 + E_g - \frac{R_x}{n^2}, \quad (1.4.3)$$

où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde du centre de masse de l'exciton, et  $M = m_e + m_h$ . Pour un puits quantique,  $E_g$  doit être remplacé par l'énergie de la transition entre états confinés, et l'énergie de liaison coulombienne doit être calculée en prenant en compte l'effet du confinement qui augmente l'interaction attractive.

Une paire électron-trou dans une boîte quantique est différente d'un exciton dans un semiconducteur massif ou un puits quantique. Le potentiel de confinement est beaucoup plus fort que l'énergie d'interaction coulombienne, la taille des boîtes quantiques étant comparable ou inférieure au rayon de Bohr. L'appellation "exciton" est alors abusive (bien que couramment utilisée) car les deux particules sont principalement localisées par le confinement, l'interaction coulombienne étant une contribution supplémentaire. L'énergie de l'exciton est alors donnée par  $E_X = E_e + E_h - \Delta_X$ , où  $E_e$  et  $E_h$  sont les énergies de l'électron et du trou, et  $\Delta_X$  est l'énergie d'interaction coulombienne directe, qui corrige l'énergie de la transition interbande.  $\Delta_X$  est donné par:

$$\Delta_X = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \int d^3r_1 d^3r_2 \Psi_X^*(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2) \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \Psi_X(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2), \quad (1.4.4)$$

où  $\Psi_X$  est la fonction d'onde de l'exciton et  $\vec{r}_{e,h}$  sont les position de l'électron et du trou, respectivement.

### 1.4.3 Règles de sélection optique

Comme on l'a vu précédemment, les paires électron-trou de plus basse énergie sont constituées d'un électron de conduction  $\left| \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle$  et d'un trou lourd  $\left| \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} \right\rangle$ . Quatre états sont possibles:

$$\begin{aligned}
 | +1 \rangle : & \quad \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\
 | -1 \rangle : & \quad \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\
 | +2 \rangle : & \quad \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\
 | -2 \rangle : & \quad \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle
 \end{aligned} \tag{1.4.5}$$

$|\chi_c\rangle$  et  $|\chi_v^{hh}\rangle$  correspondent aux fonctions enveloppe de l'électron et du trou lourd. Les états excitoniques ont alors un moment angulaire  $M_j = S_{ez} + J_{hz}$  égal à  $\pm 1$  ou  $\pm 2$ . Les états  $|M_j| = 1$  sont couplés à la lumière, ou optiquement actifs (états brillants), alors que les états  $|M_j| = 2$  ne le sont pas (états noirs), conformément à la règle de sélection  $\Delta M = \pm 1$  lors d'une transition optique dipolaire.

Dans l'hypothèse où le système est excité de façon non résonante, à haute énergie, les électrons et les trous photocréés relaxent dans la boîte quantique et forment des excitons noirs et brillants avec des probabilités similaires [36,37]. Les excitons noirs ne peuvent pas recombiner radiativement, mais ils peuvent le faire via des processus non radiatifs. Les excitons noirs peuvent également devenir brillants via des processus spin-flip, et vice-versa. Les règles de conservation d'énergie et celles de sélection indiquent que ces mécanismes de spin-flip sont assistés par les phonons et favorisés par la condition  $k_B T \gg \Delta_{BD}$ , avec  $\Delta_{BD}$  l'écart énergétique entre excitons noirs et brillants. Cet écart énergétique  $\Delta_{BD}$ , entre les états  $|\pm 1\rangle$  et les  $|\pm 2\rangle$  noirs provient de l'interaction coulombienne d'échange; cette question est réexaminée plus loin.

### 1.4.4 Etats propres de l'exciton/rôle de l'interaction d'échange

Jusqu'à présent, nous avons négligé l'interaction d'échange induite par le couplage coulombien. Nous allons l'introduire et voir qu'elle est à l'origine d'une levée de dégénérescence des états excitoniques.

Ce terme d'échange est donné par l'expression suivante:

$$E_{exc} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \int d^3r_1 d^3r_2 \Psi_X^*(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2) \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \Psi_X(\vec{r}_e = \vec{r}_2, \vec{r}_h = \vec{r}_1), \quad (1.4.6)$$

#### Cas d'une boîte symétrique ( $D_{2d}$ )

Considérons d'abord le cas d'une boîte de symétrie  $D_{2d}$ , sans contrainte. En l'absence de brisure de symétrie, les états  $|\pm 1\rangle$  restent dégénérés; ce n'est pas le cas des états  $|\pm 2\rangle$ . Seuls les états  $|\pm 1\rangle$  sont couplés à la lumière. La luminescence de ces états brillants est polarisée circulairement. Les états brillants dans les boîtes symétriques peuvent être générés directement par une excitation résonante polarisée  $\sigma_{\pm}$  (figure 1.4.2).

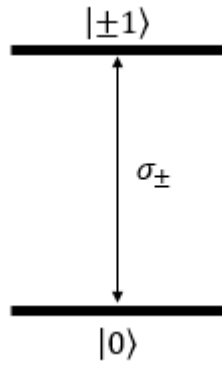


Figure 1.4.2: Structure des états des excitons brillants dans une boîte symétrique; les transitions optiques  $\sigma_{\pm}$  avec l'état fondamental sont montrées.

#### Cas d'une boîte non symétrique ( $< D_{2d}$ )

Dans l'étude des boîtes quantiques, un intérêt particulier est porté à la possibilité d'avoir un potentiel de confinement symétrique, permettant d'avoir des états excitoniques d'énergies proches, ayant un écart inférieur à la largeur des transitions excitoniques. Ceci permettrait de créer des sources de paires de photons intriqués. Cependant, pour des boîtes réelles, on peut observer une levée de dégénérescence des états  $|\pm 1\rangle$ . Cette levée de dégénérescence  $\delta_1$  est provoquée par une contrainte mécanique, des effets piézoélectriques et des effets d'anisotropie de forme de la boîte.

L'énergie d'échange (1.4.6) dépend de la distance entre les électrons et les trous ou, plus précisément, du recouvrement de leurs fonctions d'onde. Le confinement dans les boîtes quantiques amplifie ce terme d'échange, ce qui permet d'observer cette interaction assez facilement, avec des méthodes spectroscopiques. Pour estimer sa valeur, deux contributions sont à considérer: l'interaction à courte portée et l'interaction à longue portée.

La partie à courte portée est donnée par la probabilité de trouver un électron et un trou dans la même cellule élémentaire du cristal. La partie à longue portée agit sur une plus grande échelle et dépend fortement du recouvrement des fonctions enveloppes de l'électron et du trou.

### Interaction d'échange

Sans champ magnétique, l'hamiltonien de spin pour l'interaction d'échange est donné par l'expression suivante [38, 39]:

$$\mathcal{H}_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i}) \quad (1.4.7)$$

où  $S_e$  et  $J_h$  sont les spins de l'électron et du trou, et  $a_i$  et  $b_i$  sont des constantes de couplage. L'axe de croissance Oz est l'axe de quantification.

A ce stade, nous supposons que le mélange des trous lourds et des trous légers est négligeable. Dans la base  $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$ , nous obtenons pour le terme d'échange la matrice suivante [40]:

$$\mathcal{H}_{exchange} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix}. \quad (1.4.8)$$

Ici trois paramètres ont été introduits:  $\delta_0 = 1.5(a_z + 2.25b_z)$ ,  $\delta_1 = 0.75(b_x - b_y)$ ,  $\delta_2 = 0.75(b_x + b_y)$ . Dans la matrice, les termes non diagonaux égaux à zéro indiquent que les états brillants et les états noirs ne sont pas couplés. Les états sont représentés dans le tableau 1.2, où figurent également leur énergie.

$D_{2d}$ $b_x = b_y$		$< D_{2d}$ $b_x \neq b_y$	
Energie	Etat propre	Energie	Etat propre
$+\frac{1}{2}\delta_0$	$ -1\rangle$	$+\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( +1\rangle +  -1\rangle)$
$+\frac{1}{2}\delta_0$	$ +1\rangle$	$+\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{i\sqrt{2}}( +1\rangle -  -1\rangle)$
$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( +2\rangle +  -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( +2\rangle +  -2\rangle)$
$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}( +2\rangle -  -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{i\sqrt{2}}( +2\rangle -  -2\rangle)$

Table 1.2: Etats excitoniques et énergies associées.

Dans le cas d'une boîte symétrique ( $b_x = b_y$ ), le moment angulaire  $M_j$  est un bon nombre quantique pour les états brillants ( $|M| = 1$ ), qui sont dégénérés. Si la boîte est pas symétrique ( $b_x \neq b_y$ ), le moment angulaire  $M_j$  n'est pas un bon nombre quantique pour les états brillants, qui sont couplés. L'interaction coulombienne d'échange lève la dégénérescence des états propres  $|\pm 1\rangle$ , et alors les nouveaux états propres sont des combinaisons linéaires des états  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ :

$$\begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle). \end{cases} \quad (1.4.9)$$

La luminescence de ces deux états excitoniques est polarisée linéairement. Il y a maintenant un écart en énergie  $\delta_1$  entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , dénommé splitting de structure fine.

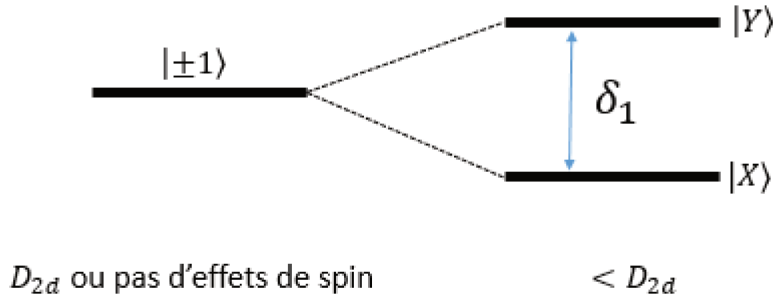


Figure 1.4.3: Structure des états des excitons brillants dans une boîte non symétrique: les états excitoniques brillants sont séparés de l'énergie de structure fine  $\delta_1$ .

Notons que les états noirs  $|\pm 2\rangle$  sont toujours couplés entre eux par l'interaction d'échange, même dans le cas des boîtes symétriques, à cause du terme de courte portée, ce qui lève leur dégénérescence, et les deux états propres sont:

$$\begin{cases} |D1\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+2\rangle - |-2\rangle) \\ |D2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle + |-2\rangle). \end{cases} \quad (1.4.10)$$

Maintenant, regardons le sens physique des séparations  $\delta_0, \delta_1, \delta_2$ .  $\delta_0$  représente l'écart en énergie entre les états noirs ( $|M_j| = 2$ ) et les états brillants ( $|M_j| = 1$ ),  $\delta_1$  est l'écart entre les deux états brillants et  $\delta_2$  est l'écart entre les deux états noirs. Pour les boîtes InAs, les valeurs sont typiquement de l'ordre de  $300 \mu\text{eV}$  pour  $\delta_0$ , et quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$  pour  $\delta_1$  et  $\delta_2$  [40, 41].

Pour résumer ce que nous avons discuté, la structure des états excitoniques dans des boîtes aux symétries différentes peut être représentée de la façon suivante:

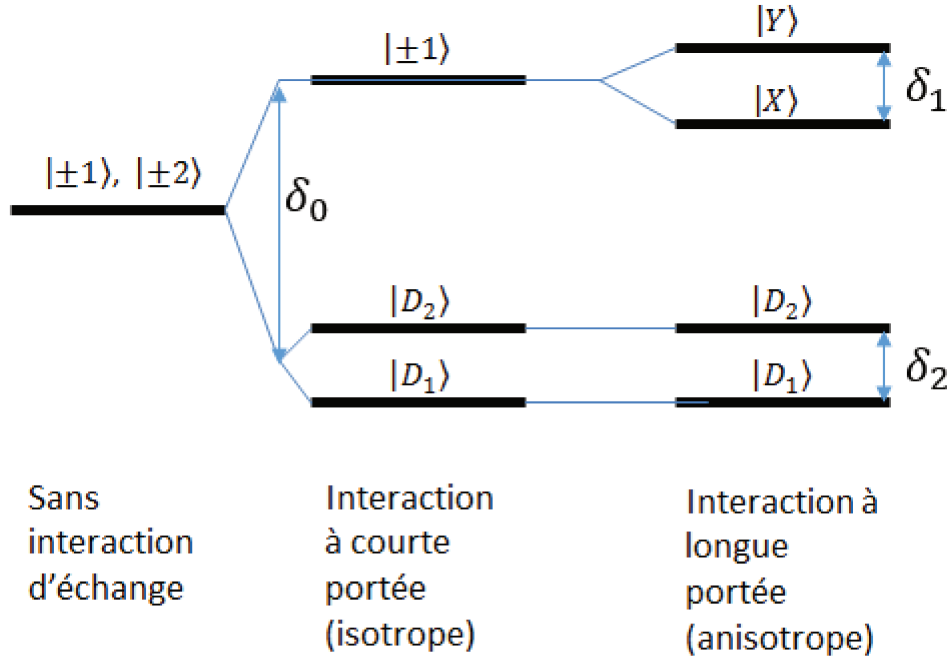


Figure 1.4.4: Schéma des états propres excitoniques en fonction de l'interaction d'échange.

### 1.4.5 Trions positif et négatif

Un trion est un état excité chargé le plus simple, formé de porteurs confinés dans une boîte quantique. Il est formé par une paire électron-trou et soit un électron (trion négatif,  $X^-$ ) soit un trou (trion positif,  $X^+$ ), comme le montre la figure 1.4.5.

La luminescence d'un trion est polarisée circulairement et ne montre pas de splitting d'échange [42]. Le spin du porteur restant peut être "lu" en analysant la polarisation du photon émis lors de la recombinaison de la paire électron-trou.

### 1.4.6 Biexciton

Un biexciton (XX) est un complexe fait de deux excitons couplés par l'interaction coulombienne. Ils partagent le même état fondamental. A cause de l'interaction entre les deux excitons, dans un biexciton, l'énergie totale est renormalisée. Les transitions optiques liant le biexciton à l'état fondamental d'une boîte quantique sont montrées sur la figure 1.4.6. Les états excitoniques  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont obtenus par une excitation résonante, de



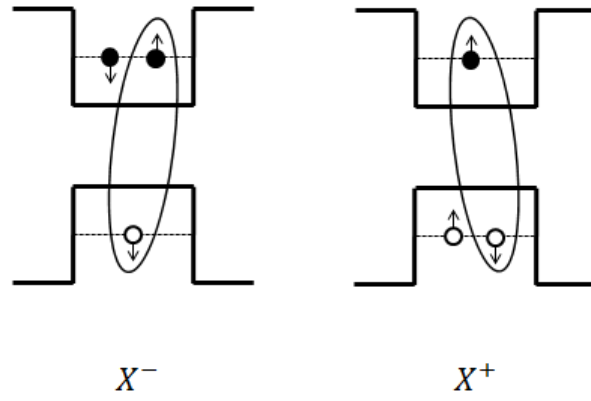


Figure 1.4.5: Représentation de trions positif et négatif.

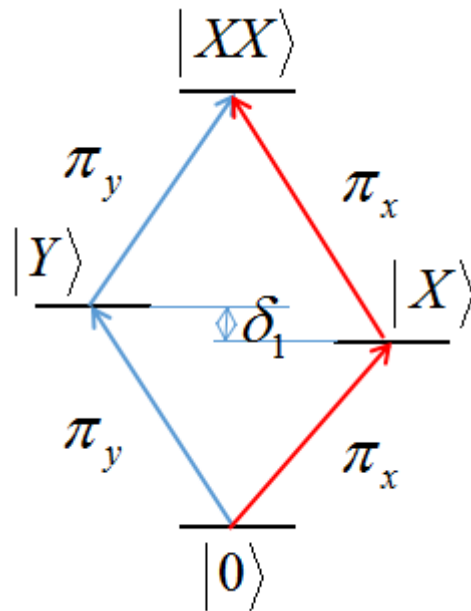


Figure 1.4.6: Transitions optiques du biexciton.

polarisations respectives,  $\pi_x$  ou  $\pi_y$ . A partir de ces états, le biexciton s'obtient via une excitation de même polarisation linéaire.

A noter que les raies d'émission du biexciton ont un splitting de signe opposé à celui de l'exciton, ainsi qu'une énergie inférieure à l'exciton en raison de l'énergie de liaison entre excitons.

#### 1.4.7 Conclusion partielle

Dans le cadre de nos études, dans les chapitres 3, 4 et 5 nous allons nous intéresser principalement à l'état de l'exciton neutre. Les raies de photoluminescence associées à cet état peuvent être déterminées et séparées des raies associées aux trions et biexcitons à partir des études résolues en polarisation.

Dans le chapitre 6 nous allons étudier des structures multichargées dans des boîtes uniques et aussi dans des doubles boîtes quantiques (molécules). Dans ce chapitre, nous nous intéresserons aux différents états chargés, directs et indirects, et nous les discuterons dans le cadre du système particulier étudié (BQ unique ou molécule).



## Chapitre 2

### Echantillons et dispositifs expérimentaux

## 2.1 Méthodes de croissance des boîtes

Dans cette partie, nous allons présenter les trois méthodes de croissance qui vont figurer dans le discours de cette thèse. Nous aborderons en particulier des techniques de croissance par épitaxie par jets moléculaires.

### 2.1.1 Auto-assemblage (InAs/GaAs)

La première méthode considérée est la croissance par auto-assemblage et dépôt de couches minces par épitaxie par jets moléculaires. On utilise ainsi deux matériaux, avec des paramètres de maille différents. Il existe trois cas, selon la force relative d'interaction. Si l'interaction entre les atomes du matériau qui est déposé est plus forte que l'interaction avec les atomes du substrat, on obtient des îlots (croissance de type Volmer-Weber) [43]. Dans le cas inverse, quand l'interaction avec le substrat est la plus forte, le résultat de la croissance est la formation de couches uniformes (croissance de type Frank-van der Merwe). Le troisième cas est le cas intermédiaire; pendant la formation de couches, la contrainte mécanique surfacique est accumulée, ce qui cause la formation d'îlots sur une couche que s'appelle "couche de mouillage". Ce mécanisme de croissance a été observé par Ivan Stranski et Lyubomir Krastanov en 1937 [44] et a été répertorié en 1958 [45] (InAs et GaAs avec la différence de paramètre de maille de 7%). La figure 2.1.1 présente une modélisation de la croissance des boîtes GeSi par la méthode Stranski-Krastanov, réalisée par A.Baskaran et P.Smereka [46], utilisant la méthode Monte-Carlo cinétique (KMC). Nous voyons les étapes de formation des îlots pendant la croissance. Pour des épaisseurs de plus que 4 monocouches, les couches suivantes de Ge forment des îlots. Maintenant, nous allons utiliser cette information pour discuter la croissance des boîtes InAs.

Dans le cas d' InAs/GaAs, on a ce même type de croissance. Pendant la croissance, les couches du substrat GaAs et les couches d'InAs sont sous contrainte mécanique, et pour une épaisseur critique (typiquement 1,5-2 monocouches atomiques), les couches suivantes commencent à former des îlots d'InAs de la forme d'une pyramide (figure 2.1.2). On obtient alors une structure avec une dimension typique d'environ 10-20 nm dans le plan et quelques nm de hauteur, ce qui permet de confiner les porteurs de charge dans les trois directions.

Ces boîtes ont une très haute dispersion, qui se caractérise en particulier par une distribution inhomogène de leur énergie d'émission (30 à 50 meV autour de leur énergie centrale). Leurs taille et densité moyennes, ainsi que l'épaisseur de la couche de mouillage, peuvent être contrôlées avec la température [48, 49] et la vitesse de dépôt [50]. Après la croissance, les paramètres des boîtes peuvent être modifiés à l'aide d'un traitement

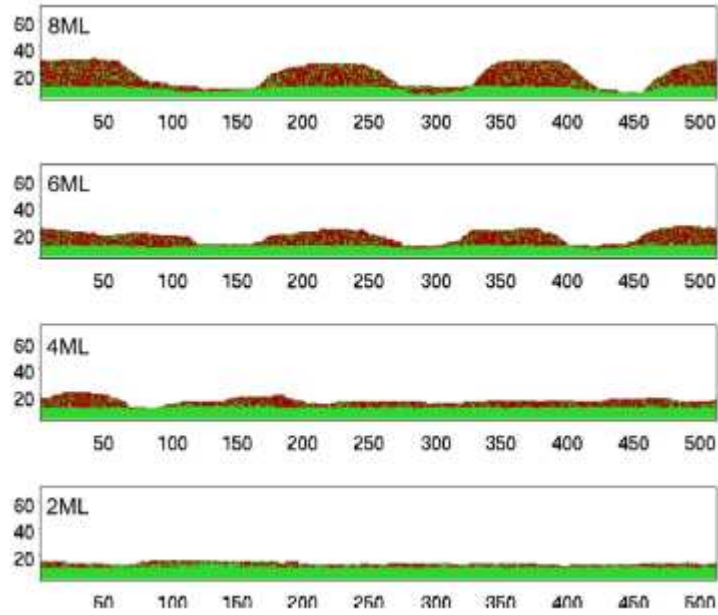


Figure 2.1.1: Modélisation de la croissance des boîtes auto-assemblées (Ge sur Si) réalisée par A.Baskaran et P.Smereka [46]. Les étapes de formation des îlots sont montrées en fonction du nombre des monocouches déposées.

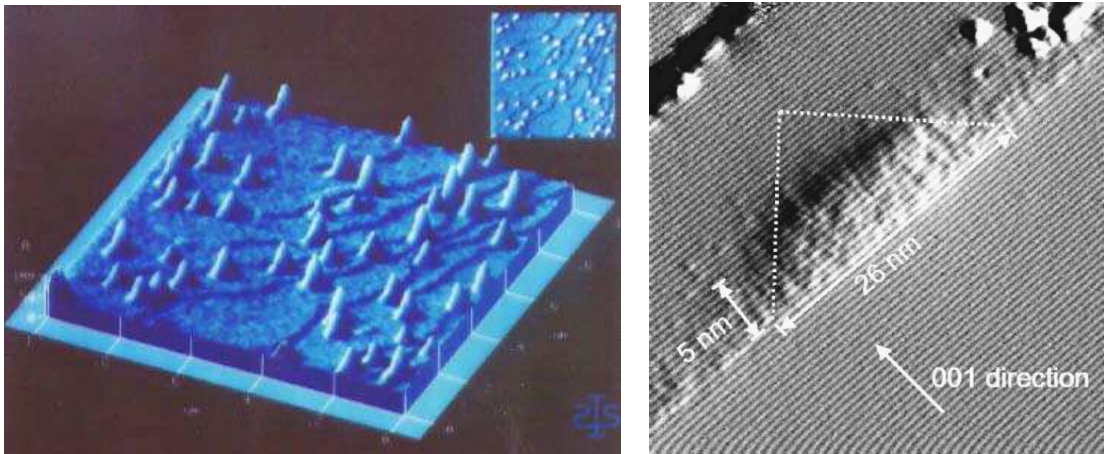


Figure 2.1.2: Image AFM des boîtes InAs avant le dépôt de la couverture de GaAs, réalisée par J.M.Moison (à gauche); Image STM d'une boîte coupée dans le plan transverse (à droit) (réf [47]).

thermique [51,52]. Ce recuit modifie la composition des boîtes, leur taille et les contraintes, ce qui entraîne en particulier une augmentation de l'énergie d'émission (blue-shift) et une variation de l'énergie de structure fine des excitons.

Pour réaliser des études de microphotoluminescence et étudier des boîtes uniques, il est important d'avoir une faible densité surfacique de boîtes (de l'ordre d'1 boîte/ $\mu\text{m}^2$ ). Comme la densité des boîtes ne peut pas être contrôlée précisément, les échantillons avec des boîtes InAs sont synthétisés avec un gradient d'épaisseur de couche InAs déposée. On peut alors définir trois zones principales sur l'échantillon: la zone où l'épaisseur de

la couche de mouillage n'est pas suffisante pour former des îlots (donc pas de boîtes quantiques), la zone où les boîtes quantiques commencent à se former et la troisième zone où l'épaisseur de la couche InAs est encore plus grande. Nous nous intéressons principalement à la deuxième zone, appelée "zone frontière".

### 2.1.2 Gouttelettes

Une autre méthode, plus récente, est l'épitaxie par jets moléculaires de type "gouttelettes" ("droplets" en anglais) [53]. C'est une évolution en comparaison avec la méthode Stranski-Krastanov parce qu'elle n'est plus limitée par les paramètres de maille des matériaux. De plus, cette méthode donne plus de liberté avec la forme des boîtes, ce qui permet de faire des structures diverses comme, par exemple, des boîtes quantiques en forme d'anneaux et des boîtes dans des nanotrous.

Les principes de cette méthode ont été démontrés par Koguchi en 1990 [54] qui a obtenu des cristaux de InSb sur un substrat de CdTe [100]. Le principe de cette méthode est de déposer sur la surface un seul matériau dont les atomes forment des gouttes pour minimiser l'énergie du système [55, 56]. L'étape suivante est de recristalliser ces gouttes en déposant un second matériau. Koguchi et al. décrivent ainsi cette technique dans la réf. [54]; le dépôt de gouttes d'In, suivi d'un flux de Sb, permet alors la recristallisation d'InSb et la formation de boîtes quantiques. En 1992, Koguchi et al. ont appliqué la même approche pour des substrats GaAs. Ils ont ainsi utilisé du Ga pour former des gouttes sur le substrat, puis un flux d'As pour recristalliser ces gouttes [57].

La figure 2.1.3 présente une illustration de cette méthode pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Pour les semiconducteurs III-V, un exemple des matériaux utilisés sera Ga, Al dans le groupe III et As dans le groupe V.

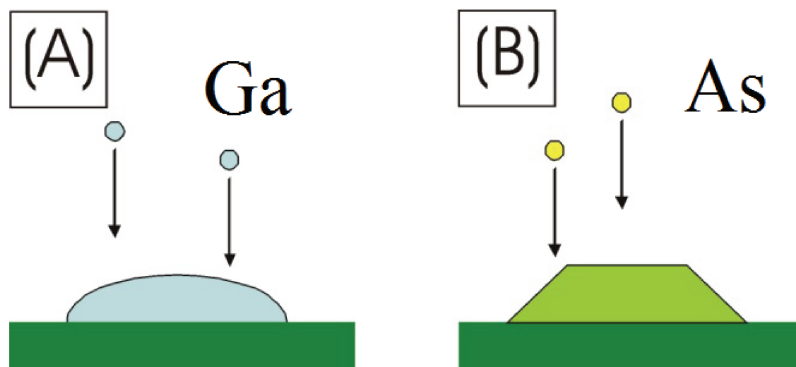


Figure 2.1.3: Principe de la croissance de gouttelettes: (A) dépôt d'une goutte d'un premier matériau (ex: Ga) sur le substrat, (B) recristallisation en présence d'un flux de matériau complémentaire (ex: As). [53].

Lors de ce premier résultat, Koguchi et al. ont utilisé un substrat préalablement préparé. Parmi les étapes importantes avant dépôt de gouttes, on peut citer le nettoyage du substrat GaAs dans une solution de  $H_2SO_4$ , la réalisation d'une surface de Ga stabilisée et la présence de vapeur de soufre. Cette deuxième étape (ou "S-termination") permet d'adsorber une monocouche de S à la surface. Cette procédure a pour effet de réduire la densité des états de surface. D'autres approches, utilisant un traitement du substrat GaAs par une solution de  $(NH_4)_2S_x$ , ont montré une amélioration des caractéristiques C-V des structures Schottky ainsi réalisées [58]. Cependant, une conséquence négative est que les propriétés des boîtes quantiques obtenues par cette méthode sont médiocres, à cause de la présence de soufre et d'une faible qualité cristallographique.

Une modification de cette méthode a été proposée à la fin des années 1990. Cette modification consiste à changer l'ordre des opérations pendant la croissance. Watanabe et Koguchi ont ainsi décalé le processus de S-termination vers la fin de la procédure de croissance [59], après la formation des boîtes quantiques. Par la suite, une approche sans soufre a été développée en s'appuyant sur un contrôle précis de la température et des flux des matériaux déposés pendant la croissance [60]. Sur la figure 2.1.4 nous voyons 4 profils latéraux des boîtes GaAs/AlGaAs droplets pour des épaisseurs nominales de la couche de Ga.

### 2.1.3 Remplissage de nanotrous

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux boîtes qui sont formées dans des nanotrous - le résultat d'une croissance de type droplet avec une combinaison des paramètres de croissance (température, flux) permettant la synthèse de nanotrous. Typiquement, la croissance des boîtes de type droplet est faite à une température relativement basse - de 100 à 350°C. En 2007, Wang et al. ont observé qu'aux températures plus hautes - 450-620°C - des nanotrous sont formés à la surface du substrat [20]. Avec ces conditions de croissance, le dépôt de Ga sur le substrat entraîne la formation de gouttes à la surface pour minimiser leur énergie (l'interface Ga-GaAs devient instable). La température élevée permet de dissoudre le substrat. Comme schématisé sur la figure 2.1.5 (à gauche), la formation de nanotrous suit plusieurs étapes. Tout d'abord, la formation de gouttes a lieu comme mentionné précédemment. La diffusion de l'As du substrat vers la goutte s'accompagne d'une diffusion du Ga vers le substrat ainsi que d'une désorption [62]<sup>1</sup>. Un flux d'As permet une recristallisation du matériau et une stabilisation des trous.

Une fois ces nanotrous obtenus, il est possible de réaliser des boîtes quantiques (ou des doubles boîtes quantiques).

---

<sup>1</sup>La présence de l'effet de désorption peut dépendre des conditions de croissance utilisées.



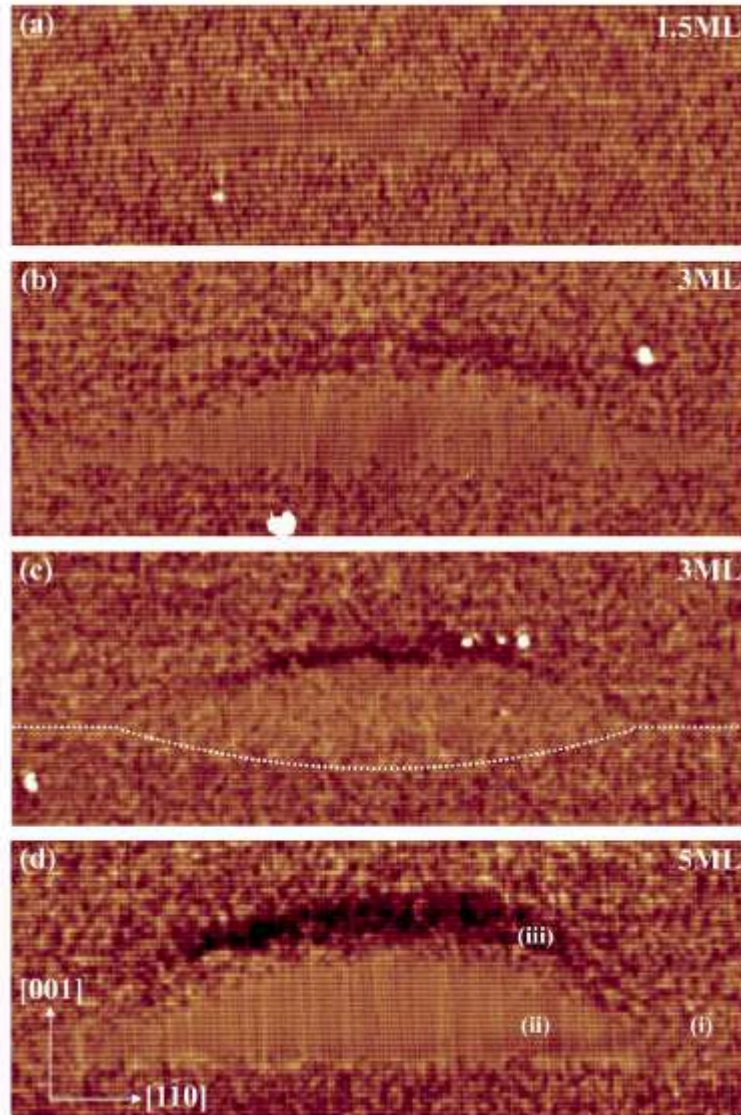


Figure 2.1.4: Images X-STM des profils latéraux de 4 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs obtenues par la méthode de croissance épitaxiale moléculaire de type droplet pour 4 épaisseurs nominales de Ga déposé. Images réalisées par J.Bocquel et al. [61]

Nous allons étudier les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs obtenues par cette méthode. Après formation des nanotrous, les étapes de croissance des boîtes quantiques sont présentées sur la figure 2.1.5 (à droite).

Plusieurs étapes de remplissage sont nécessaires. Il s'agit des dépôts consécutifs de matériaux des boîtes (GaAs) et de matériaux de barrière (AlGaAs). Après dépôt d'une couche de AlGaAs, qui constituera une barrière de la boîte quantique, une couche de GaAs est déposée; une pause permet aux atomes de migrer vers le fond du nanotrou. La fabrication de la boîtes quantique s'achève par le dépôt d'une couche d'AlGaAs qui constitue la seconde barrière. Sur la figure 2.1.5 est représenté le principe de la synthèse d'une double boîte quantique (qui est aussi appelée QDM = quantum dot molecule en

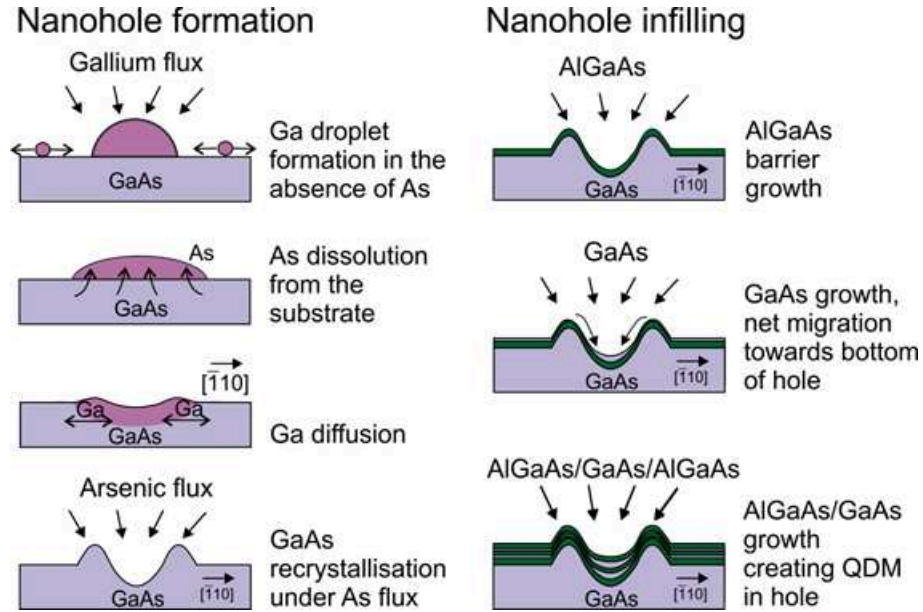


Figure 2.1.5: Etapes de croissance des boîtes quantiques dans les nanotrous. A gauche: formation des nanotrous; A droite: fabrication des boîtes par remplissage des nanotrous. Images réalisées par P. Atkinson et al. [63]

anglais). Cette technique a fait l'objet d'un nombre significatif d'améliorations au cours des dernières années. Pour ces boîtes quantiques, des distributions en énergie de 10 meV ont été obtenues [64] et un contrôle précis a été démontré sur l'énergie d'émission et la densité des boîtes [63]. Les nanotrous sont des objets très intéressants parce qu'ils permettent de créer des structures complexes, non seulement des boîtes uniques, mais aussi des molécules - deux boîtes quantiques séparées par une barrière [65]. Les QDM qui sont étudiées dans le chapitre 6 de cette thèse sont obtenues avec cette méthode et sont formées de deux boîtes quantiques dans un même trou séparées par une barrière AlGaAs. Les propriétés de chaque boîte, dans cette structure, sont contrôlées indépendamment.

Le remplissage des trous est généralement fait dans l'ordre:

- 1) barrière AlGaAs
- 2) couche de boîtes (famille 1)
- 3) barrière AlGaAs

pour obtenir une boîte dans chaque nanotrou. Pour les QDM il faut ajouter encore deux étapes de dépôt: 4) couche de boîtes (famille 2)

- 5) barrière AlGaAs

La densité des nanotrous peut aussi être contrôlée avec la température et est typiquement d'environ 1 boîte/ $\mu\text{m}^2$ . L'énergie de confinement est définie par la taille des nanotrous et par l'épaisseur de la couche GaAs. Notons que l'épaisseur des boîtes quantiques dans les nanotrous est différente de celle de la couche à l'extérieur en raison de la

migration des atomes durant la pause de la croissance. L'épaisseur réelle ainsi que l'énergie de confinement sont montrées sur la figure 2.1.6 pour une famille de boîtes quantiques réalisées par cette méthode [63].

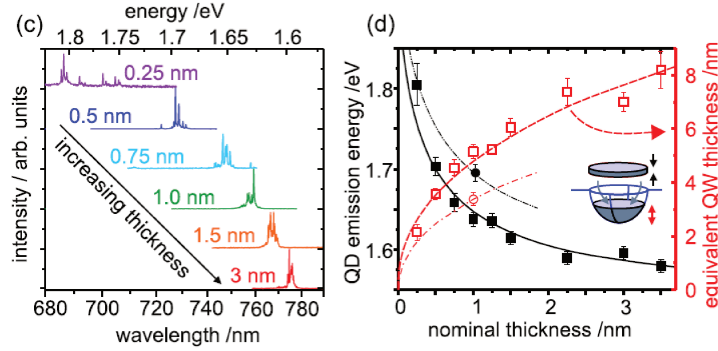


Figure 2.1.6: (c) Variation du spectre de microphotoluminescence de boîtes quantiques dans des nanotrous en fonction de l'épaisseur nominale de GaAs. (d) Énergie d'émission des boîtes quantiques en fonction de l'épaisseur nominale de GaAs; épaisseur équivalente d'un puits quantique ayant la même énergie d'émission (proche de l'épaisseur de la boîte). Images réalisées par P. Atkinson et al. [63].

L'épaisseur des boîtes quantiques peut être estimée par des mesures AFM, comme illustré sur la figure 2.1.7, qui montre le profil d'un nanotrou avant et après dépôt du GaAs (pour des épaisseurs nominales de 1 nm et 1,5 nm).

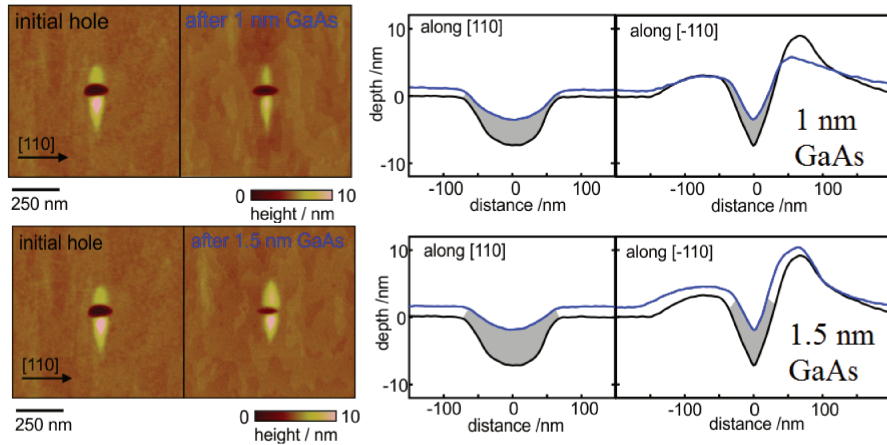


Figure 2.1.7: Images AFM (gauche) et profils statistiques selon les directions cristallographiques [110] et [-110] (moyenne de 10 boîtes) (droite) pour deux épaisseurs de couche de GaAs 1 et 1.5 nm. Le profil en noir - avant le dépôt, en bleu - après le dépôt de GaAs; en gris - le volume approximatif de la boîte. Images réalisées par P. Atkinson et utilisées avec sa permission.

Les valeurs typiques du splitting de structure fine (FSS)  $\delta_1$ , pour des boîtes auto-assemblées InAs, sont dispersées et vont de la dizaine à la centaine de  $\mu\text{eV}$ , ce qui est beaucoup plus grand que la largeur de raie excitonique ( $\sim 1\mu\text{eV}$ ) et interdit toute création de paires de photons intriqués.

Pour ces boîtes auto-assemblées, les possibilités de contrôler la forme et la taille des boîtes sont limitées. Il est possible de réduire le splitting de structure fine  $\delta_1$  en utilisant une contrainte mécanique [66, 67], un traitement thermique [52, 68], un champ électrique [69, 70] ou magnétique [71, 72], ou la piezoélectricité [73, 74].

Un point négatif de ces méthodes est qu'elles changent l'énergie d'émission des boîtes (il se produit un fort blueshift lors d'un recuit [75, 76], par exemple). Nous nous intéressons par la suite aux résultats observés sur des boîtes as-grown obtenues par des méthodes de croissance différentes.

La croissance sur les substrats (111) GaAs a permis d'obtenir des boîtes quantiques InAs/GaAs avec un FSS de quelques  $\mu eV$  en moyenne. Mais sur les substrats (001) qui sont les plus étudiés, les valeurs de FSS sont beaucoup plus dispersées ce qui n'est pas acceptable pour la fabrication de sources de photons intriqués.

Les boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous sont de meilleures candidates pour obtenir des FSS très petits parce que cela élimine un des facteurs qui détruisent la symétrie du potentiel, à savoir: les contraintes. Le défi devient alors de bien contrôler la forme des boîtes, dont la symétrie géométrique devient un paramètre important. Pour ce type de boîtes, il a été montré que des valeurs aussi petites que  $3,9 \mu eV$  sont possibles pour l'ensemble des boîtes, avec une dispersion de  $\pm 1.8 \mu eV$  pour un bon choix des paramètres de croissance [77].

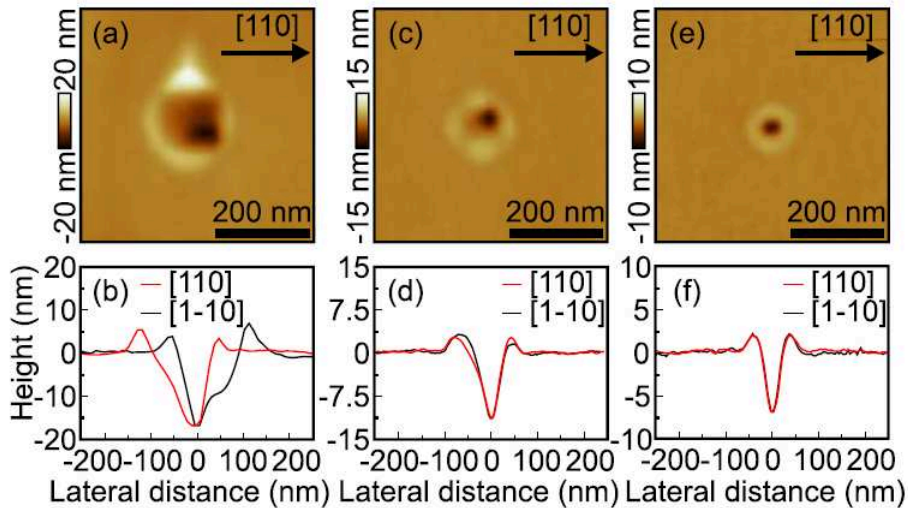


Figure 2.1.8: (a)(c)(e) Images AFM de la topographie correspondant à trois nanotrous étudiés par Huo et al. [77]. (b)(d)(f) Profil des boîtes (a)(c)(e), respectivement.

Sur la figure 2.1.8, on peut voir trois nanotrous obtenus dans GaAs, de symétries différentes, ainsi que leurs profils. Les spectres de photoluminescence correspondants (figure 2.1.9) montrent la variation du FSS pour les trois boîtes qui sont fabriquées dans ces nanotrous. Ces boîtes ont une épaisseur d'environ 7-8 nm et des dimensions latérales

de  $\sim 50$  nm. Le FSS change avec la forme de la boîte; il varie de  $3 \mu\text{eV}$  environ pour la boîte la plus symétrique jusqu'à plusieurs dizaines de  $\mu\text{eV}$  pour les nanotrous les plus anisotropes.

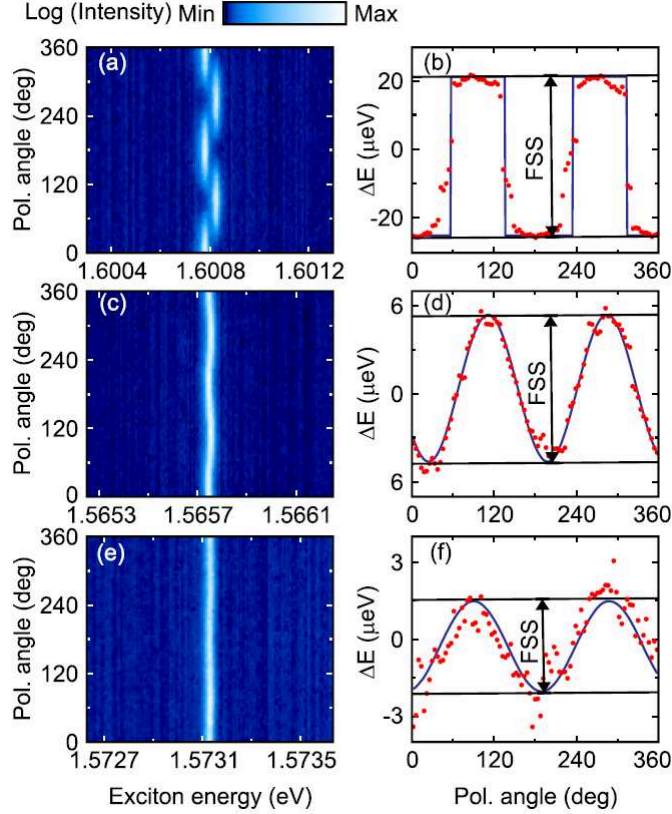


Figure 2.1.9: Spectres de photoluminescence (à gauche) et FSS (à droite) associés aux boîtes quantiques synthétisées dans les nanotrous (a)(c)(e) de la figure 2.1.8, obtenus par Huo et al. [77]. Les spectres de PL sont pris à  $7\text{K}$ , avec une résolution de  $20 \mu\text{eV}$ , en utilisant une excitation optique à  $532 \text{ nm}$ .

## 2.2 Fabrication des échantillons

Au cours de ce travail de thèse, plusieurs systèmes ont été étudiés:

- des boîtes quantiques uniques, non dopées, de deux natures différentes: InAs/GaAs et GaAs/AlGaAs;
- des boîtes quantiques uniques GaAs/AlGaAs avec une charge contrôlée, car insérées dans une structure n-i-Schottky;
- des doubles boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec charge variable, insérées dans une structure n-i-Schottky (présentées au chapitre 6)

Différents développements technologiques ont été réalisés au cours de cette thèse.

### 2.2.1 Boîtes quantiques uniques neutres

Pour les études sur boîtes quantiques uniques neutres, nous utiliserons des échantillons avec une faible densité de boîtes. Comme nous l'avons déjà précisé, pour les boîtes InAs/GaAs, nous utiliserons un échantillon découpé dans la zone frontière, et pour les boîtes GaAs/AlGaAs, des échantillons dont la densité est faible et bien contrôlée pendant la croissance.

#### Masque optique

Les boîtes sont distribuées dans le plan de manière aléatoire avec une certaine densité moyenne. En raison des temps d'acquisition longs, il s'est avéré utile de placer des repères afin de pouvoir étudier la même boîte à plusieurs reprises. Afin d'y parvenir, nous avons choisi de faire des masques optiques. Ces masques servent à repérer, à l'échelle du spot lumineux (quelques  $\mu m$ ), la zone étudiée de l'échantillon, à l'aide de grands éléments marqués. Ceci permet également d'isoler mécaniquement des régions de quelques micromètres carrés.

#### Lithographie optique

Nous avons fait des masques optiques par lithographie optique. La lithographie optique, bien que moins précise que la lithographie électronique, permet de faire des éléments avec une résolution d'environ 1 micromètre et dans un champ de quelques millimètres en dimensions latérales, ce qui permet d'étudier de larges zones de l'échantillon. Des ouvertures de 1-3 microns en diamètre vont limiter la zone effective de l'excitation lumineuse et le nombre de boîtes couvertes par le faisceau laser, sachant que la densité des boîtes est  $\sim 1$  boîte/ $\mu m^2$  environ.

Le processus de lithographie optique consiste en cinq étapes.

1) Une couche fine (épaisseur typique 1  $\mu m$ ) de résine optique est déposée sur la surface de l'échantillon.

2) La résine est exposée au laser aux endroits préalablement définis dans un fichier modélisant le masque.

3) La résine exposée (lithographie positive) ou non exposée (lithographie négative) est retirée avec un produit chimique spécial (développeur).

4) Dépôt du masque. Avec un évaporateur, une couche uniforme d'or est déposée sur la surface de l'échantillon. Notre masque en or a une épaisseur de 80 nm.

5) Lift-off. Avec de l'acétone, on enlève la résine restante, avec tout le matériau excédentaire. Le résultat est représenté sur les figures 2.2.1, 2.2.2 et 2.2.3. Sur la figure 2.2.1, nous voyons une image MEB d'un masque optique en forme d'un carré en or (des rangées de trous peuvent être distinguées). La figure 2.2.2 montre une image MEB de deux trous - 1 et 2  $\mu\text{m}$  en diamètre nominal, agrandis. Les diamètres réels des trous sont plus petits que leurs valeurs nominales, et au début de thèse, la qualité des petits trous n'était souvent pas acceptable pour ce motif. La raison de cet effet va être discutée dans le paragraphe suivant.

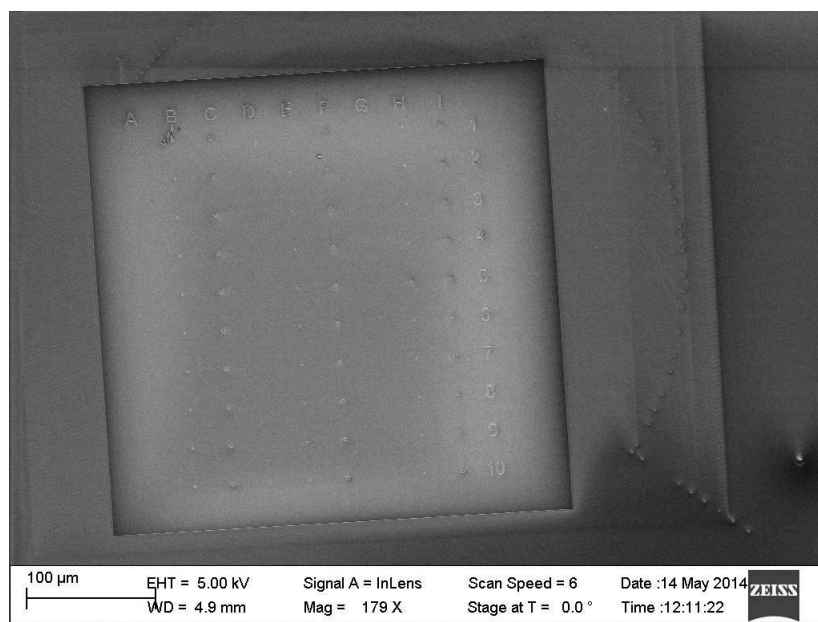


Figure 2.2.1: Image MEB d'un masque optique de la forme d'un carré.

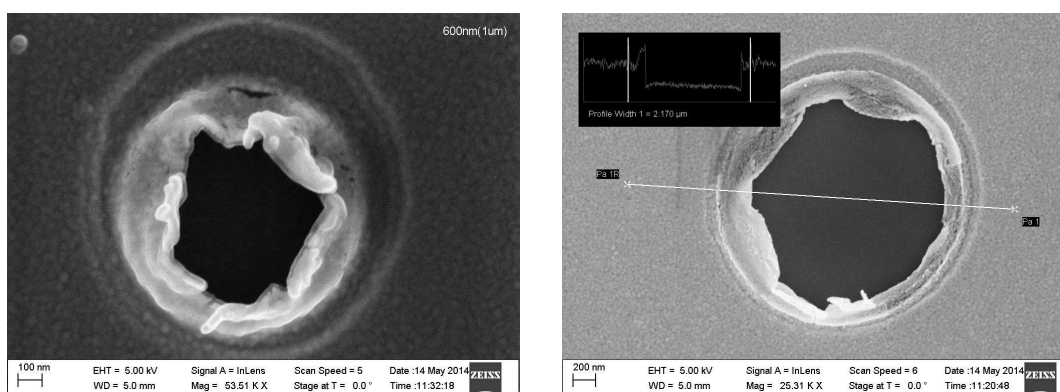


Figure 2.2.2: Images MEB de deux trous avec les diamètres nominaux 1  $\mu\text{m}$  (gauche) et 2  $\mu\text{m}$  (droite)

Pour améliorer la qualité de la lithographie optique, nous avons essayé la lithographie avec des résines négatives, ce qui a donné une différence significative. Pour expliquer la différence de résultats entre les résines positives et négatives, il est nécessaire de donner une brève description de chaque méthode.

Quand la résine est exposée, cette exposition n'est pas uniforme à cause du profil de puissance du faisceau laser - qui a une distribution gaussienne. Les bords du volume exposé ne sont pas verticaux, mais inclinés. Pour la lithographie positive, avant le lift-off, on a une couche continue sur toute la surface de l'échantillon, ce qui rend le lift-off moins efficace: il faut non seulement dissoudre la résine sous la couche d'or, mais aussi arracher les parties d'or qui sont encore liées aux parties utiles. Par contre, si on utilise la lithographie négative, la résine qui reste a la forme de cônes tronqués inversés, et pendant le lift-off, la résine restante est ainsi naturellement séparée. Pour illustrer cet effet, sur la figure 2.2.3, on voit deux carrés traités différemment. A gauche, nous voyons un masque obtenu par la lithographie positive. La plupart des trous sont bouchés; nous avons accès à un certain nombre de trous de  $3\mu m$  et à peu de trous de  $2\mu m$  en diamètre nominal. Au contraire, la lithographie négative (fig. 2.2.3, droite) donne un résultat parfait, avec des trous de toutes les tailles, bien accessibles.

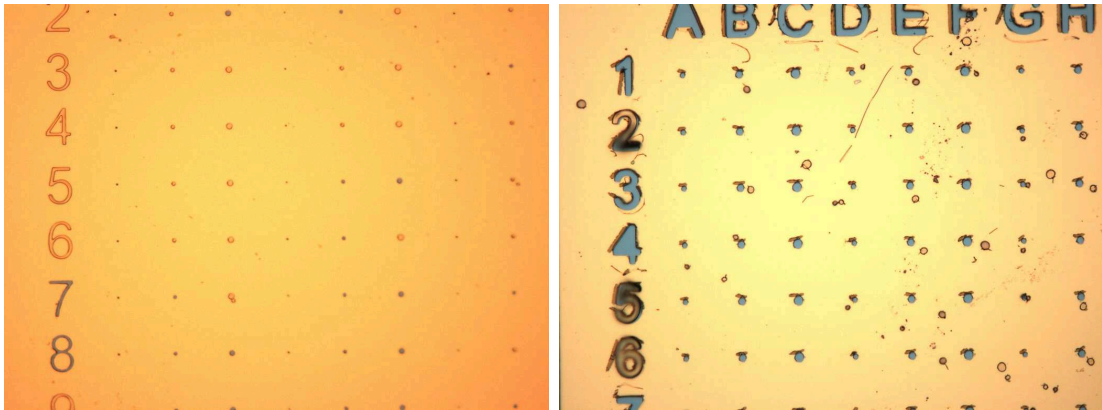


Figure 2.2.3: Effet des deux méthodes de lithographie sur la même structure pour les trous de 2, 3 et  $4\mu m$  en diamètre, séparés de  $25\text{ nm}$ : lithographie positive (gauche) - la plupart des trous sont bouchés, nous avons accès à un certain nombre de trous de  $3\mu m$  et peu de trous de  $2\mu m$  en diamètre nominal; lithographie négative (droite) - des trous de toutes les tailles sont bien accessibles.

## 2.2.2 Boîtes quantiques uniques chargées

### Diode Schottky

La mise en évidence de trions, ou excitons chargés, dans des boîtes quantiques a fait l'objet de nombreuses études, ce qui a conduit à s'intéresser au contrôle de la charge dès les années 1990 [78]. Pour effectuer ces études, nous utiliserons des diodes Schottky. Ce sont des hétérostructures avec des contacts Schottky. La jonction métal-semiconducteur crée une différence de potentiel. Avec une barrière intégrée à cette structure, nous observons le comportement d'une diode quand les processus tunnel des électrons sont interdits dans



une direction. La figure 2.2.4 montre la structure de bandes d'une structure n-i-Schottky.

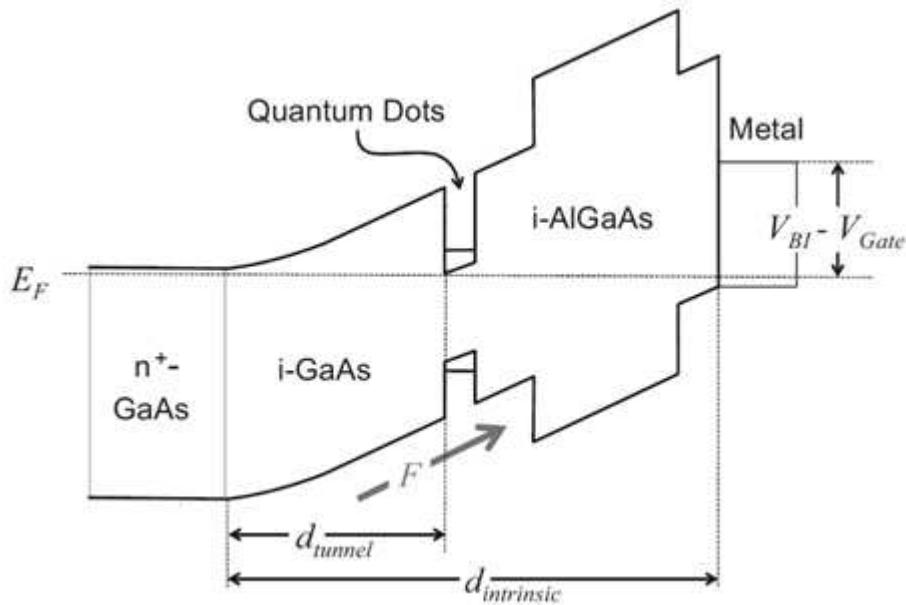


Figure 2.2.4: Schéma de la structure de bandes d'un échantillon de boîtes quantiques dans une diode n-i Schottky

Les échantillons que nous utilisons, ont une couche de GaAs dopée n+ avec du Si, suivie d'une couche de GaAs non dopée. La couche des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs est faite avec la technique de croissance par remplissage de nanotrous. Les électrons dans les boîtes sont bloqués dans une direction par une barrière AlGaAs épaisse, mais peuvent tunneler dans l'autre direction. L'application d'une tension électrique positive permet d'injecter des électrons de la couche GaAs dopée dans les boîtes quantiques. On peut charger négativement les boîtes quantiques et photogénérer des excitons chargés négativement,  $X^-$ . Si on applique une tension inversée, on augmente la probabilité d'un effet tunnel d'un électron de la boîte vers la couche n-GaAs. Il devient possible de charger positivement une boîte quantique en photocréant une paire électron-trou dans la boîte, l'électron s'échappant vers la couche n-GaAs et le trou restant localisé dans la boîte.

### Fabrication des échantillons

Pour faire les deux contacts, nous avons utilisé la technique d'évaporation des couches minces. Dans cette partie, on va voir les étapes de fabrication plus en détail.

La première étape est la fabrication d'un contact en face arrière qui doit être en contact avec la couche dopée n+. Pour accéder à la couche dopée, nous avons fait une

gravure chimique. Avant de réaliser cette gravure, il est nécessaire de préparer la structure en définissant le motif souhaité par lithographie optique. Le développeur ouvre les zones du futur contact, le reste étant couvert par la résine qui est résistante à la solution de gravure. La solution utilisée est  $3H_2O_2 : 1H_3PO_4 : 40H_2O$ . La vitesse de gravure dépend de la concentration de l'acide et varie pour les différents matériaux (GaAs, AlGaAs, etc.). Pour les proportions sélectionnées, cette vitesse est d'environ 150 nm/minute, ou 2.5 nm/s (NB: la gravure chimique d'une couche de GaAs avec la même solution en proportions 3:1:60 donne une vitesse d'environ 1 nm/s [79]). Au début de la procédure de gravure, cette vitesse est plus petite si la surface est oxydée. Après chaque exposition à la gravure, nous vérifions le profil de l'échantillon avec un profilomètre. Nous pouvons contrôler assez précisément la profondeur de la gravure sachant que l'épaisseur des structures est de 300 nm pour nos échantillons.

L'étape suivante est de faire le contact arrière lui-même. Il s'agit d'un contact diffusif Au-Ge. Pour faire ce type de contact dans la zone gravée, nous avons déposé les couches suivantes: Ni 10 nm, Ge 60 nm, Au 120 nm, Ni 20 nm et Au 200 nm. Après un recuit à 400°C pendant une minute, un alliage eutectique se forme (la température de fusion est 361°C) et diffuse dans l'échantillon avec une longueur de diffusion de l'ordre de 100 nm. Cette importante longueur de diffusion permet de compenser les gravures incomplètes, dans certains cas, et ainsi assurer un bon contact. Le résultat de cette étape est présenté dans la figure 2.2.5

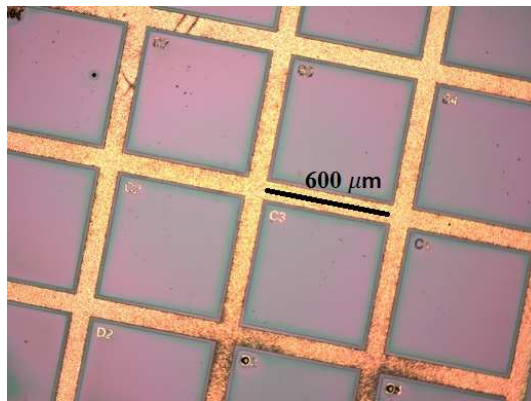


Figure 2.2.5: Image d'un échantillon avec une grille de contact arrière

Sur cette image, on peut voir des petites bandes (20 microns de largeur, en bleu plus foncé) autour des carrés. C'est le résultat d'une étape de gravure supplémentaire qui assure qu'il n'y a pas de court-circuit entre le contact arrière et les éléments qui sont faits ensuite sur la surface. L'épaisseur de ces zones est d'environ 200 nm, qui est un peu moins que la profondeur de la couche dopée et du contact diffusif. Chaque carré est identifié par

ses coordonnées pour faciliter la navigation sur l'échantillon.

Après la fabrication des contacts en face arrière, nous avons préparé des contacts de face avant. Sur les carrés définis par la grille, nous avons dessiné des carrés d'une taille de 300 microns avec la lithographie optique. Pour faire le contact métallique, nous avons utilisé du Cr avec une épaisseur d'environ 10 nm. Ensuite, nous avons ajouté un masque optique - le même que dans la partie précédente, mais cette fois avec une légère modification dans le positionnement. Le carré d'or est un peu décalé et laisse une bande de Cr d'environ 20  $\mu\text{m}$  pour faciliter le réglage optique et aussi pour pouvoir mesurer plusieurs boîtes en même temps; de plus, ceci permet de constater la qualité du contact plus facilement. Le résultat est présenté sur l'image 2.2.6.

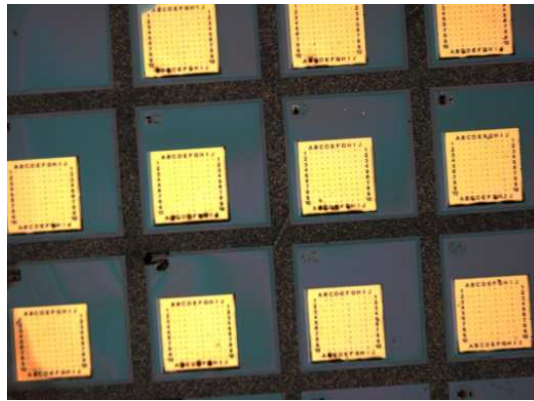


Figure 2.2.6: Image d'un échantillon avec une grille de contact arrière et les contacts de face avant avec des masques optiques

Finalement, pour connecter les fils électriques, une microsoudreuse a été utilisée avec des fils d'Al. La soudure est faite avec une certaine force mécanique qui détruit la couche de masque optique (80 nm) si on essaie de se connecter directement sur cette partie. Pour éviter des dégâts et avoir un meilleur contact, nous avons fait une étape supplémentaire de lithographie pour réaliser des reports de contact, de forme rectangulaire, avec une couche d'or plus épaisse (200 nm) en contact avec le masque. Sur cette zone, il est plus facile de souder et il y a beaucoup moins de risque d'arracher l'or de la surface. La version finale de l'échantillon est montrée sur l'image 2.2.7.

Toutes les étapes de fabrication une fois achevées, l'échantillon est ensuite collé sur un microchip. Des microfils sont alors soudés d'une part sur les reports de contact de l'échantillon, d'autre part sur les reports de contact du microchip. Ceci facilite la manipulation. Les grands contacts de chip sont ensuite utilisés pour souder de plus grands fils en cuivre pour connecter l'échantillon à l'intérieur du cryostat vers l'électronique.

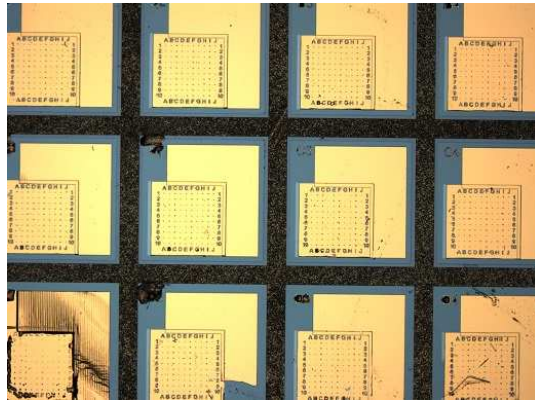


Figure 2.2.7: Image d'un échantillon après toutes les étapes de fabrication - le contact arrière, les contacts de face avant avec des masques optiques et les reports de contact.

### Caractéristiques I-V

La première étape des expériences avec les diodes Schottky est la mesure  $I(V)$ , qui permet de sélectionner les meilleures diodes pour effectuer des études sur boîtes quantiques. Les paramètres qui nous intéressent sont la valeur du courant noir et le seuil de redressement. Le plus efficace est de faire d'abord des courbes I-V à la température ambiante.

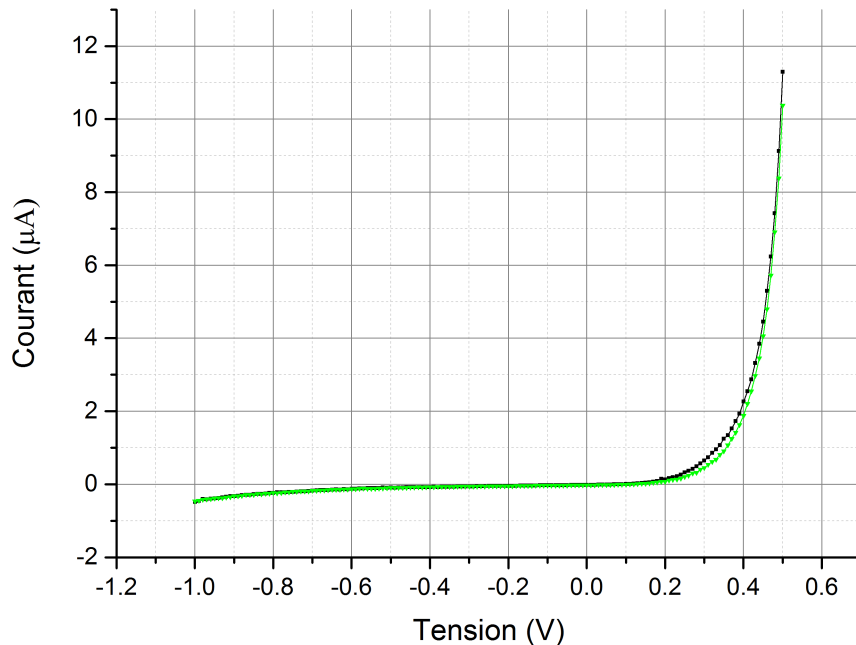


Figure 2.2.8: Caractéristiques I-V pour deux diodes différentes, à la température ambiante.

En général, les bonnes diodes sont celles avec les courants de fuite les plus petits, pour ne pas contribuer au chargement des boîtes. Sur la figure 2.2.8, deux caractéristiques de diodes sont montrées, qui sont satisfaisantes. Nous allons nous concentrer sur les diodes

sélectionnées à partir des courbes I-V; la valeur de la tension de redressement typique pour ces diodes est 0.4 V.

### Influence de l'éclairage

L'excitation d'une diode par la lumière génère des porteurs dans la structure, ce qui crée un photocourant. La figure 2.2.9 montre une courbe I-V enregistrée à la température ambiante sans lumière, et cinq courbes enregistrées à la température ambiante mais avec éclairage de l'échantillon par une lampe de poche. Cette procédure a été répétée pour 5 diodes différentes et aussi pour les mêmes diodes quand l'échantillon était couvert. Nous observons des photocourants négatifs de  $0,2 \mu A$ , à 0V. Pour la même configuration, avec l'échantillon exposé à un laser, à 10K, nous observons des courbes similaires. Pour une tension de 0V, le photocourant atteint  $1 \mu A$  pour une puissance d'excitation de  $100 \mu W$ , le faisceau étant sur la zone libre (sans or).

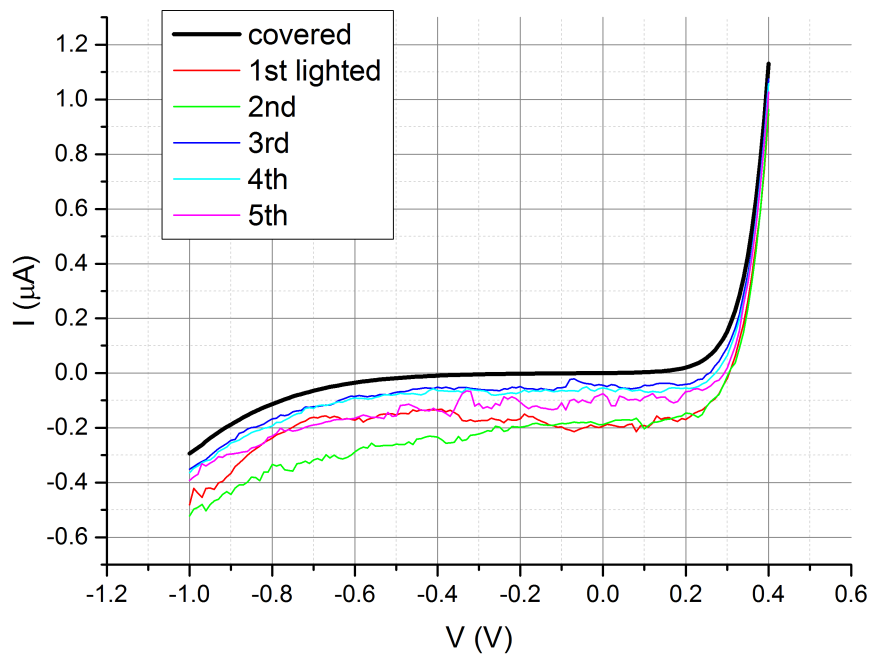


Figure 2.2.9: Caractéristiques I-V de cinq diodes Schottky connectés un par un sans éclairage et avec la lumière d'une lampe de poche

### Influence de la température

Nous avons enregistré des caractéristiques I-V à la température ambiante et à 10K. La figure 2.2.10 montre la différence entre les courbes I-V avant et après la mise à froid du

cryostat au cours d'une série des mesures. Des courbes pour 4 diodes ont été enregistrées. Pour vérifier la qualité des contacts, nous avons fait les mêmes courbes pour deux contacts de masse (donc 8 courbes au total sur chaque graphique, qui font 4 paires selon les diodes), les fils de ces contacts se trouvent dans deux endroits différents sur l'échantillon. A basse température, les valeurs absolues de courant diminuent par rapport aux valeurs à la température ambiante, et les courbes pour deux contacts de masse sont presque identiques. Pour l'échantillon n-i-Schottky avec des boîtes quantiques molécules GaAs/AlGaAs que nous étudions dans le chapitre 6, la différence entre les valeurs pour deux températures pour les mêmes diodes est d'environ 25%.

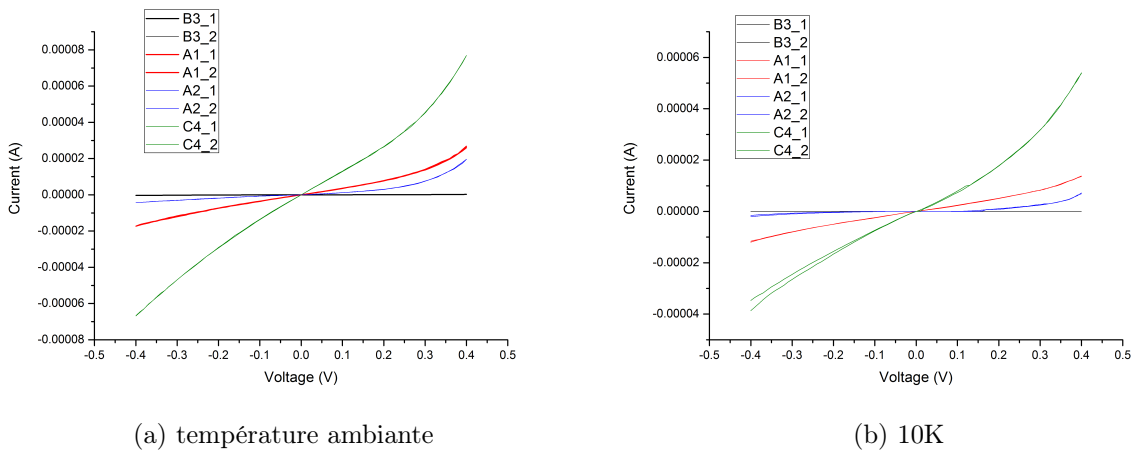


Figure 2.2.10: Caractéristiques I-V de diodes Schottky à la température ambiante et à 10K pour 4 diodes, numérotées B3, A1, A2 et C4. Deux courbes sont montrées pour chaque diode, avec des contacts de masse différents.

## 2.3 Montages expérimentaux

Deux montages de microphotoluminescence ( $\mu$ PL) ont été développés et utilisés, dont un sous fort champ magnétique.

### 2.3.1 Expérience de spectroscopie des états

#### Cryostat avec circulation fermée de l'hélium

Pour les expériences de spectroscopie des états neutres et chargés, à champ magnétique nul, nous avons utilisé un cryostat à circulation fermée de l'hélium fonctionnant grâce à un tube pulsé. L'avantage principal de ce type de cryostat est la stabilité grâce à l'absence d'éléments mobiles dans la partie froide. Pendant nos expériences, le point de focalisation

du laser restait au même endroit avec une erreur de moins d'un micron pendant plusieurs jours (les séries les plus longues ont duré 3 jours consécutifs).

### Emplacement de l'échantillon dans le cryostat (piézo 3d)

L'échantillon était collé sur une monture associée à trois contrôleurs piézoélectriques (stack 3d) qui permettait le déplacement de l'échantillon sur trois axes avec une résolution spatiale de 0.1 micron. Ce montage a été positionné dans la partie isolée du cryostat, sur une platine froide (figure 2.3.1). La température de l'échantillon pendant nos expériences était d'environ 10K. Nous avons utilisé une configuration d'excitation et de détection



Figure 2.3.1: Emplacement de l'échantillon dans le cryostat avec circulation fermée d'hélium. Le stack 3d de contrôleurs piézoélectriques Micronix est monté sur une platine froide en cuivre et se trouve derrière un objectif de microscope.

confocale. Un objectif de microscope a été installé devant la monture des contrôleurs piézoélectriques à l'intérieur du cryostat. La précision du positionnement selon trois axes de  $0.1 \mu\text{m}$  permet d'optimiser le signal des boîtes uniques.

### Détail du montage optique

Le schéma général du montage expérimental est présenté sur la figure 2.3.2. Pour l'excitation, une diode laser CW est utilisée. Les deux longueurs d'onde utilisées sont 532 nm et 635 nm. 635 nm est en dessous de l'énergie du gap de l'AlGaAs, ce qui permet d'exciter les

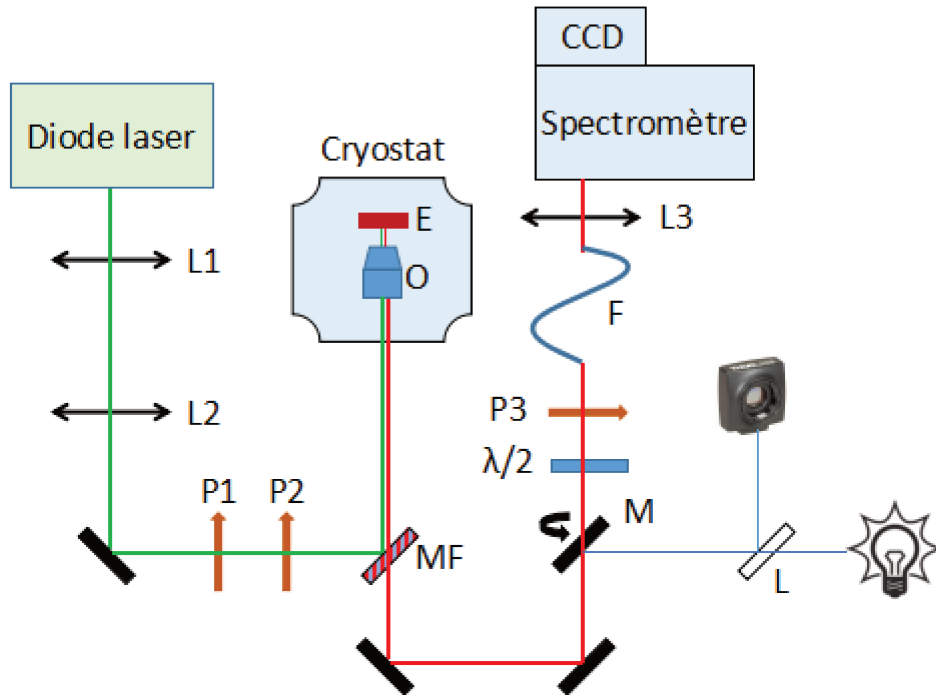


Figure 2.3.2: Schéma général du montage expérimental (cryostat avec circulation fermée d'hélium). Le faisceau d'excitation sort de la diode CW, passe par deux lentilles L1 et L2, avec des distances focales 200 et 50 mm respectivement, et est ensuite dirigé par un miroir froid (MF) vers l'échantillon (E) dans le cryostat. Le faisceau est focalisé sur la surface de l'échantillon par un objectif de microscope (O) qui se trouve à l'intérieur du cryostat, sa monture est installée sur la platine froide. Deux polariseurs linéaires (P1 et P2) sont installés sur le chemin d'excitation pour contrôler la puissance du laser. Le signal est collecté par le même objectif, passe par le miroir froid et est ensuite filtré par une lame  $\lambda/2$  et un polariseur linéaire (P3). Ensuite le signal passe par une fibre optique (F) et est focalisé sur la fente d'entrée du spectromètre par une lentille (L3). L'éclairage avec la lumière blanche et la visualisation de l'échantillon sont faits alternativement avec la détection du signal. L'éclairage est fait avec un miroir flip (M) et une lampe blanche (la lumière passe par une lame séparatrice 50-50 (L)). La visualisation de l'échantillon est faite avec une caméra Thorlabs, le signal est dirigé vers la caméra par le même miroir (M) et la lame séparatrice L.



porteurs dans les boîtes, tout en restant relativement loin de l'énergie de photoluminescence des boîtes (qui est entre 700 et 800 nm) pour ne pas être gêné par la luminescence du laser dans l'analyse spectrale. Cependant, cette longueur d'onde pose un autre problème: l'absorption de la lumière visible par la couche NiCr des contacts, est apparemment plus forte pour l'excitation à 635 nm, de sorte que l'excitation à 532 nm donne plus de signal pour la même puissance d'excitation.

Pour contrôler la puissance délivrée à l'échantillon, deux polariseurs linéaires sont utilisés. Comme l'excitation est toujours non résonante, la polarisation d'excitation est perdue après la relaxation des porteurs. La puissance peut être variée de quelques nW à 10-30 mW (selon le laser choisi et l'orientation des polariseurs).

Un miroir froid non polarisant est utilisé pour diriger le faisceau d'excitation vers l'échantillon. Comme le signal de  $\mu$ PL passe aussi par ce miroir, il est important de s'assurer qu'il ne change pas la polarisation du signal.

Pour faire des analyses en polarisation, une lame  $\lambda/2$  (interchangeable avec une lame  $\lambda/4$ ) dans un moteur de rotation Thorlabs et un polariseur ont été installés avant la fibre optique de détection. La détection est faite avec une fibre optique monomode qui est couplée à un spectromètre Shamrock 500i et une caméra CCD Andor refroidie par un élément Peltier. Ce système a une résolution spectrale de  $40 \mu eV$ , ce qui permet de déterminer des FSS à partir de  $20 \mu eV$ , par la déconvolution de deux pics (ajustement avec des pics Gaussiens ou Lorentziens). Pour la visualisation de la surface d'échantillon, l'éclairage avec la lumière blanche est réalisé dans notre montage. Il est fait alternativement à la détection du signal, avec un miroir flip et une lampe blanche. La visualisation de l'échantillon est faite avec une caméra Thorlabs, le signal est dirigé vers la caméra par le même miroir flip, avec une lame séparatrice 50-50.

### Automatisation

Pour effectuer des séries d'acquisitions de longue durée, nous avons interfacé la source de tension Keithley 2400b, un moteur tournant avec une lame  $\lambda/2$  et la caméra CCD. Les programmes faits sous LabView contrôlent les appareils individuellement et le programme principal gère la séquence des actions. Ceci nous a permis de faire jusqu'à 1000 acquisitions de 10 minutes chacune, en trois jours, sans arrêt, en régime automatique, grâce à la stabilité du cryostat.

### 2.3.2 Expérience de micromagnétophotoluminescence

#### Cryostat "Spectromag", connexions électroniques

Le cryostat utilisé est un modèle Oxford Spectromag alimenté par une alimentation de courant IPS-120 qui permet d'étudier les échantillons en champ magnétique jusqu'à 8 T. Les bobines magnétiques peuvent pivoter ce qui permet d'appliquer le champ magnétique en configuration Faraday (champ longitudinal) et en configuration Voigt (champ transverse). Le cryostat fonctionne avec un réservoir d'hélium liquide qui est connecté au volume dans lequel l'échantillon est placé.

#### Echantillon dans le VTI – montage

L'échantillon est collé sur un stack 3d de contrôleurs piézoélectriques Attocube monté sur une canne porte-échantillon (figure 2.3.3) qui est placée au coeur du Spectromag. Avec



Figure 2.3.3: Stack 3d de contrôleurs piézoélectriques Attocube monté sur une canne porte-échantillon, avec une lentille asphérique montée dans un support en cuivre

une résolution spatiale de  $0,1 \mu m$ , nous pouvons optimiser le signal des boîtes uniques. Dans l'insert, une lentille asphérique avec une distance focale de 2 mm, est installée pour les expériences dans l'hélium liquide. Une résistance de 50 ohms a été montée pour chauffer le porte-échantillon et changer plus facilement les échantillons sans réchauffer tout

le cryostat. La température à l'intérieur du cryostat peut être mesurée avec un capteur de température Cernox. Le câblage est disposé le long de l'insert, ce qui permet de connecter les éléments du stack piézoélectrique, la résistance et le capteur de température à l'extérieur. Les mesures sont faites avec l'échantillon dans l'hélium superfluide, à 2K, le volume contenant l'échantillon étant sous pompage.

### Détail du montage optique

Le schéma général du montage expérimental est présenté sur la figure 2.3.4.

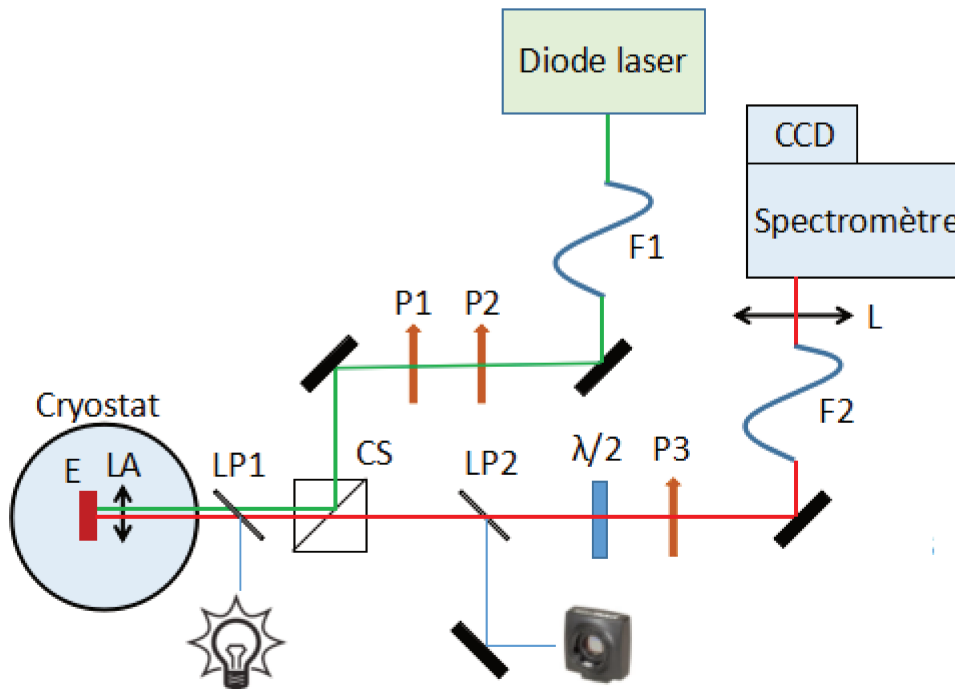


Figure 2.3.4: Schéma général du montage expérimental (cryostat Spectromag). Le faisceau d'excitation sort de la diode CW, passe par une fibre optique monomode (F1), et est ensuite dirigé vers l'échantillon (E) dans le cryostat Spectromag par un cube séparateur non-polarisant (CS). Le faisceau est focalisé sur la surface de l'échantillon (E) par une lentille asphérique (LA). Deux polariseurs linéaires (P1 et P2) sont installés sur le chemin d'excitation pour contrôler la puissance du laser. Le signal est collecté par la même lentille, passe par le cube séparateur et est ensuite filtré par une lame  $\lambda/2$  et un polariseur linéaire (P3). Ensuite le signal passe par une fibre optique (F2) et est focalisé sur la fente d'entrée du spectromètre par une lentille (L). L'éclairage avec la lumière blanche et la visualisation de l'échantillon peuvent être faits simultanément avec la détection du signal. L'éclairage est fait avec une lame pelliculaire (LP1) et une lampe blanche. La visualisation de l'échantillon est faite avec une caméra Thorlabs, le signal est dirigé vers la caméra par une lame pelliculaire (LP2)

L'excitation utilisée est une diode laser CW à 635 nm. Le faisceau est dirigée vers la partie principale du montage par une fibre optique monomode. Deux polariseurs permettent de contrôler la puissance délivrée vers l'échantillon. Un cube séparateur non

polarisant 70-30 (transmission-réflexion) dans la région des longueurs d'onde 700-1100 nm sert à l'excitation et à la détection devant le cryostat. Pour le contrôle visuel, une lame pelliculaire est utilisée pour pouvoir intervenir pendant les réglages avec le minimum de perturbations, le système étant sensible aux moindres déplacements. Sur le chemin de la détection, une lame  $\lambda/2$  et un polariseur sont posés devant une fibre optique monomode qui est couplée avec un double spectromètre et une caméra CCD Acton refroidie par l'azote liquide. La lame  $\lambda/2$  est installée dans un moteur tournant que nous utilisons pour automatiser nos acquisitions (section Automatisation). La résolution de ce système est  $\sim 15\mu eV$ .

### Automatisation

Plusieurs éléments du dispositif expérimental ont été interfacés avec l'ordinateur pour effectuer de longues séries de mesures. Le programme principal contrôle l'ordre des opérations et permet de changer le champ magnétique (le courant généré par l'IPS), la position du moteur tournant, et aussi enregistrer les résultats des acquisitions de la caméra CCD dans un fichier.

### 2.3.3 Expériences menées

La suite du manuscrit est divisée en 4 chapitres correspondant à 4 expériences effectuées. Dans le chapitre 3, le chapitre suivant, nous allons voir les résultats des expériences sur le mélange de bandes de trous lourds et trous légers. Ces mesures ont été faites avec le montage 2 et le cryostat magnétique. Le champ magnétique n'est pas nécessaire, mais nous avons choisi d'utiliser ce montage à cause du spectromètre à plus haute résolution, afin de déterminer les paramètres du mélange plus précisément. Les résultats dans les chapitres 4 et 5, qui présentent nos études des paramètres magnéto-optiques, sont aussi obtenus avec le montage 2 et le cryostat magnétique. Le montage 1 nous a servi pour les caractérisations de nos échantillons et pour les études des boîtes intégrées dans une structure Schottky en champ électrique, ce que nous allons voir dans le chapitre 6.



## Chapitre 3

Polarisation de l'émission des boîtes quantiques  
et effets du mélange des trous lourds et  
légers

### 3.1 Introduction

Dans les boîtes quantiques, deux bandes de valence correspondant aux trous lourds et trous légers, ne sont plus dégénérées en raison du confinement. La bande de trous légers se trouve alors à plus basse énergie. Pour les boîtes InAs/GaAs, cet écart  $\Delta_{HL}$  est de l'ordre de la centaine de meV. Traditionnellement, seuls les excitons formés par les trous lourds purs ( $J_z = \pm 3/2$ ) sont considérés. Dans les années 80, les effets du mélange des trous lourds et légers ont été invoqués pour expliquer certains désaccords entre la théorie et les résultats expérimentaux dans des puits quantiques, qui furent les premières nanostructures à séparer bandes de trous lourds et trous légers [80, 81].

Les études expérimentales sur les boîtes InAs contraintes montrent que ce mélange peut atteindre des valeurs non-négligeables [82, 83]. Dans des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs non contraintes, il a été ainsi montré que application d'une contrainte biaxiale change les propriétés de photoluminescence de manière significative et que ce changement pourrait être attribué à un fort degré de mélange des trous lourds et trous légers (jusqu'à 25% de trous légers) [84]. Des excitons dans l'état fondamental et formés avec un trou léger (95-99% de trou léger) ont même été obtenus récemment [85].

Dans ce chapitre, nous allons analyser la polarisation linéaire des boîtes InAs/GaAs sans champ magnétique, ni contrainte mécanique appliquée, puis déterminer le mélange des trous lourds et légers et comparer les valeurs obtenues avec les résultats précédemment publiés. Ensuite, nous nous intéresserons à des boîtes GaAs/AlGaAs, non contraintes, obtenues par remplissage des nanotrous, puis nous comparerons l'importance des effets du mélange dans ces deux systèmes et les origines possibles de ce mélange.

### 3.2 Contributions à l'effet du mélange

Pour discuter des différentes contributions aux effets du mélange, nous allons prendre la classification présentée récemment par Luo et al [86]. Six contributions à un couplage HH-LH (Heavy Holes et Light Holes en anglais) peuvent être indentifiées et ont pour origine:

- le confinement 3D, et tout particulièrement selon Oz
- l'anisotropie de forme planaire
- les effets des contraintes
- le désordre d'alliage
- l'abaissement de la symétrie aux interfaces
- la symétrie  $C_{2v}$  intrinsèque du cristal blende de zinc et l'inéquivalence des directions [110] et  $[1\bar{1}0]$

A ces couplages, s'ajoute un nouvel effet discuté par Luo et al [86], très récemment, nommé "supercouplage", induit par une forte densité d'états discrets de trous lourds situés entre les états fondamentaux de trou lourd et trou léger.

Si l'approche développée par Luo et al [86] s'appuie sur un calcul pseudopotentiel atomique, il est intéressant de discuter de deux Hamiltoniens couramment utilisés pour calculer les états électroniques: l'Hamiltonien  $k \cdot p$  de Kohn - Luttinger [87] et l'Hamiltonien de Bir-Pikus [88, 89] qui rend compte de l'effet des contraintes, dans un cristal blende de zinc. Ces deux contributions sont habituellement décrites dans la base des états  $\Gamma_8$  :  $|u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle$ ;  $|u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle$ ;  $|u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle$ ;  $|u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle$ . Au voisinage de  $\vec{k} = 0$ , ces Hamiltoniens, dans un système à 4 bandes, décrivent les interactions entre les bandes HH et LH. L'hamiltonien de Kohn-Luttinger  $H_{KL}$  a une forme de matrice ( $4 \times 4$ )

$$\begin{pmatrix} P_{LK} + Q_{LK} - E_g & S_{LK} & R_{LK} & 0 \\ S_{LK}^\dagger & P_{LK} - Q_{LK} - E_g & 0 & R_{LK} \\ R_{LK}^\dagger & 0 & P_{LK} - Q_{LK} - E_g & S_{LK} \\ 0 & R_{LK}^\dagger & -S_{LK}^\dagger & P_{LK} + Q_{LK} - E_g \end{pmatrix} \quad (3.2.1)$$

Les composantes de cet hamiltonien s'écrivent:

$$\begin{cases} P_{LK} = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\gamma_1(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \\ Q_{LK} = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\gamma_2(k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2) \\ R_{LK} = \frac{\hbar^2}{2m_e}\sqrt{3}(\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3k_xk_y) \\ S_{LK} = \frac{\hbar^2}{2m_e}2\sqrt{3}\gamma_3(k_x - ik_y)k_z \end{cases} \quad (3.2.2)$$

$\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  et  $\gamma_3$  sont les paramètres de Luttinger qui sont liés aux couplages entre les différentes bandes dans un cristal.  $m_e$  est la masse de l'électron libre.

L'hamiltonien Bir-Pikus  $H_{BP}$  a la même forme que l'hamiltonien de Kohn-Luttinger mais utilise les composantes du tenseur des déformations. On passe d'une forme à l'autre par des permutations du type  $k_i k_j \leftrightarrow \epsilon_{ij}$ . Il couple aussi les états de trous lourds et trous légers par des termes non-diagonaux.

Il a la forme:



$$\begin{pmatrix} P_{BP} + Q_{BP} - E_g & S_{BP} & R_{BP} & 0 \\ S_{BP}^\dagger & P_{BP} - Q_{BP} - E_g & 0 & R_{BP} \\ R_{BP}^\dagger & 0 & P_{BP} - Q_{BP} - E_g & -S_{BP} \\ 0 & R_{BP}^\dagger & -S_{BP}^\dagger & P_{BP} + Q_{BP} - E_g \end{pmatrix} \quad (3.2.3)$$

Ici

$$\begin{cases} P_{BP} = a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \\ Q_{BP} = -\frac{b_v}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) \\ R_{BP} = \frac{\sqrt{3}}{2}b_v(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) - id_v\epsilon_{xy} \\ S_{BP} = d_v(\epsilon_{zx} - i\epsilon_{yz}) \end{cases} \quad (3.2.4)$$

$a_v$  est le potentiel de déformation hydrostatique,  $b_v$  et  $d_v$  sont les potentiels de déformation de cisaillement selon les directions cristallographiques [001] (axe z) et [111]. Les contraintes créent les termes non-diagonaux R et S non-nuls qui contribuent au mélange LH-HH. Les atomes proches des interfaces sont particulièrement influencés, ce qui a un impact sur les fonctions d'onde dans les boîtes. Dans les boîtes InAs/GaAs, la contribution des effets des contraintes peut atteindre 80% du mélange [86].

Une méthode, souvent utilisée pour décrire les effets du mélange est de combiner ces deux hamiltoniens  $H_{LK}$  et  $H_{BP}$ . La matrice associée peut s'écrire:

$$\begin{pmatrix} P + Q - E_g & S & R & 0 \\ S^\dagger & P - Q - E_g & 0 & R \\ R^\dagger & 0 & P - Q - E_g & -S \\ 0 & R^\dagger & -S^\dagger & P + Q - E_g \end{pmatrix} \quad (3.2.5)$$

avec

$$\begin{cases} P = P_{LK} + P_{BP} \\ Q = Q_{LK} + Q_{BP} \\ R = R_{LK} + R_{BP} \\ S = S_{LK} + S_{BP} \end{cases} \quad (3.2.6)$$

Dans la base des états atomiques  $|u_{3/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle; |u_{-3/2}^v\rangle$  l'hamiltonien peut être réécrit sous la forme

$$\begin{pmatrix} E^{hh} & \rho e^{-2i\psi} & \sigma & 0 \\ \rho e^{2i\psi} & E^{hh} - \Delta_{HL} & 0 & -\sigma \\ \sigma^* & 0 & E^{hh} - \Delta_{HL} & \rho e^{-2i\psi} \\ 0 & -\sigma^* & \rho e^{2i\psi} & E^{hh} \end{pmatrix} \quad (3.2.7)$$

$\Delta_{HL}$  est l'écart en énergie entre les états de trous légers et de trous lourds,  $\rho$  et  $|\sigma|$  sont les amplitudes du couplage entre les différentes bandes de valence,  $\psi$  est la direction d'anisotropie du système dans le plan des boîtes, par rapport à la direction  $[1\bar{1}0]$  et

$$\begin{cases} \rho e^{-2i\psi} = \langle \chi_v^{hh} | R | \chi_v^{lh} \rangle \\ \sigma = \langle \chi_v^{hh} | S | \chi_v^{lh} \rangle \end{cases} \quad (3.2.8)$$

On peut montrer que les états mélangés ont comme énergie propre [83]:

$$E = E^{hh} - \frac{\Delta_{HL}}{2} \pm \sqrt{\frac{\Delta_{HL}^2}{4} + \rho^2 + |\sigma|^2} \quad (3.2.9)$$

Le couplage augmente l'écart en énergie entre les trous lourds et les trous légers, qui vaut alors  $\sqrt{\Delta_{HL}^2 + 4(\rho^2 + |\sigma|^2)}$ , tout en favorisant le mélange lourds-légers.

Les couplages R et S ont pour effet de mélanger les états  $J_z = +3/2$  et les états  $J_z = -3/2$  avec les états  $J_z = \pm 1/2$ . Les nouveaux états propres s'écrivent ainsi:

$$\Psi_{\pm 3/2} = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2}} \left\{ \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} \right\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \beta e^{\pm 2i\psi} \left| \frac{3}{2}, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle + \gamma e^{\pm 2i\Phi} \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right\} \quad (3.2.10)$$

Par la suite, nous allons considérer plus particulièrement l'effet du couplage en  $R(\rho e^{2i\psi})$  et la valeur de  $\beta$ .

### 3.2.1 Effet du confinement

Le confinement 3D, en particulier selon Oz, a été considéré comme un mécanisme important, capable d'induire un mélange HH-LH significatif [90–93].

Les boîtes quantiques obtenues par MBE peuvent être caractérisées par leur épaisseur  $a_z$  et leur extension latérale L. Le facteur de forme  $\frac{a_z}{L}$  est en général petit devant 1 (et toujours  $< 1$ ), comme observé pour différentes familles de boîtes quantiques.

La forme typique des boîtes InAs/GaAs auto-assemblées est un cône tronqué. Les dimensions typiques pour ce type de boîtes sont environ 5 nm en hauteur et 20-30 nm en

largeur. Les boîtes de type droplets ont une forme latérale avec un profil gaussien [94,95]; leur hauteur est typiquement 10 nm et la largeur  $\sim 50$  nm. Les boîtes dans les nanotrous ont une taille latérale similaire aux boîtes de type droplet, mais la hauteur peut varier et est typiquement de quelques nm. Le confinement selon l'axe de croissance (l'axe Z) est ainsi plus fort que le confinement latéral dans le plan xy, pour les trois types de boîtes.

Pour estimer l'effet du confinement sur le mélange HH-LH, une approche communément utilisée est de considérer  $H_{KL}$ . Afin de résoudre analytiquement ces équations, Fischer et Loss [92] ont modélisé les boîtes quantiques à l'aide d'un potentiel parabolique de symétrie cylindrique selon Oz. Ce potentiel parabolique est donné par

$$\begin{aligned} V_{dot} &= V_z(z) + V_{xy}(x, y), \\ V_z(z) &= \frac{m_{\perp}\omega_{\perp}^2}{2}z^2, \\ V_{xy}(x, y) &= \frac{m_{\parallel}\omega_{\parallel}^2}{2}(x^2 + y^2) \end{aligned} \quad (3.2.11)$$

$\omega_{\perp} = \hbar/(m_{\perp}a_z^2)$  et  $\omega_{\parallel} = \hbar/(m_{\parallel}L^2)$  avec des masses effectives de la bande HH,  $m_{\perp} = m_0/(\gamma_1 - 2\gamma_2)$  (hors plan des boîtes) et  $m_{\parallel} = m_0/(\gamma_1 + \gamma_2)$  (dans le plan des boîtes),  $a_z$  est la longueur de confinement selon l'axe de croissance et  $L$  est la longueur de confinement latérale. L'état fondamental  $|\phi_{HH}^{00}\rangle$  de  $H_{LK} + V_{dot}$  a une fonction enveloppe, dont la représentation est donnée par

$$\langle r|\phi_{HH}^{00}\rangle = \phi_{HH}^{0\perp}(z)\phi_{HH}^{0\parallel}(x, y) \quad (3.2.12)$$

avec les fonctions propres de l'oscillateur harmonique

$$\begin{aligned} \phi_{HH}^{0\perp}(z) &= \frac{1}{\sqrt{\sqrt{\pi}a_z}} \exp\left\{-\frac{1}{2}\frac{z^2}{a_z^2}\right\} \\ \phi_{HH}^{0\parallel}(x, y) &= \frac{1}{\sqrt{\pi}L} \exp\left\{-\frac{1}{2}\frac{x^2 + y^2}{L^2}\right\} \end{aligned} \quad (3.2.13)$$

Il est également possible de définir les différents états confinés, HH et LH, par ce potentiel harmonique. Ils prennent la forme  $\langle r|\phi_{\alpha}^{ijk}\rangle = \phi_{\alpha}^i(z)\phi_{\alpha}^j(x)\phi_{\alpha}^k(y)$ .  $\alpha$  dénote la bande de valence considérée (HH, LH) et l'indice i (j,k) précise qu'il s'agit de la i(j,k)-ème fonction propre de l'oscillateur harmonique.

A partir des termes non diagonaux de  $H_{LK}$ , il est possible d'estimer le mélange HH-LH, et en particulier les grandeurs  $\Delta_{HL}$  et  $\beta$ . Fischer et Loss [92] ont ainsi calculé les

énergies des états fondamentaux HH et LH:

$$\begin{aligned} E_{HH} &= -\frac{\hbar^2}{2} \left( 2 \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{m_0 L^2} + \frac{\gamma_1 - 2\gamma_2}{m_0 a_z^2} \right) \\ E_{LH} &= -\frac{\hbar^2}{2} \left( 2 \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{m_0 L^2} + \frac{\gamma_1 + 2\gamma_2}{m_0 a_z^2} \right) \end{aligned} \quad (3.2.14)$$

où  $\gamma_i (i = 1, 2, 3)$  sont les paramètres de Luttinger. L'écart en énergie HH-LH est alors donné par:

$$\Delta_{HL} = \frac{2\hbar^2 \gamma_2 L^2 - a_z^2}{m_0 L^2 a_z^2} \quad (3.2.15)$$

De plus, le terme de couplage  $S_{LK}$  (entre les états  $J_z = \pm 3/2$  et les états  $J_z = \pm 1/2$ ) conduit à l'expression suivante du coefficient de mélange  $\gamma$ :

$$\gamma = \frac{\sqrt{3}\eta\gamma_3 a_z L}{2\sqrt{2}\gamma_2(L^2 - a_z^2)} \quad (3.2.16)$$

avec

$$\eta = \langle \phi_{HH}^{1\pm} | \phi_{LH}^{1\pm} \rangle = \left[ 1 - \left( \frac{\gamma_2}{\gamma_1} \right)^2 \right] \frac{(\gamma_1^2 - 4\gamma_2^2)^{3/4}}{\gamma_1^{3/2}} \quad (3.2.17)$$

Pour une boîte de 50 nm en largeur et 3 nm en hauteur- ce qui correspond à la taille des boîtes GaAs/AlGaAs qui sont étudiées dans ce chapitre, nous obtenons ( $\gamma_1 = 7$ ,  $\gamma_2 = 2$  et  $\gamma_3 = 3$  pour GaAs) la valeur  $\gamma = 4 \cdot 10^{-2}$ .

Le terme de couplage entre les états  $J_z = \pm 3/2$  et  $J_z = \mp 1/2$  est plus faible, d'un facteur  $\frac{a_z}{L}$  [92]. On obtient ainsi  $\beta \simeq \frac{a_z}{L} \simeq 2 \cdot 10^{-3}$ , indiquant un effet faible du confinement. Ce résultat a d'ailleurs été confirmé par Luo et al [86], dans une approche différente à l'aide d'un pseudopotentiel.

### 3.2.2 Effet de l'anisotropie planaire

L'anisotropie de forme des boîtes dans le plan est souvent considérée comme un des paramètres à l'origine du mélange [96–101]. En effet, si dans les boîtes auto-assemblées (par exemple, InAs/GaAs), l'effet des contraintes est considéré comme l'effet dominant, pour les boîtes sans contrainte GaAs/AlGaAs (droplets ou nanotrous), le mélange HH-LH est souvent attribué à la forme de la boîte. Nous allons donc chercher à estimer l'ordre de grandeur de cet effet pour des boîtes de taille et d'anisotropie comparables aux boîtes que nous étudions.

Reprenant un potentiel de confinement parabolique, tout en incluant une anisotropie dans le plan xOy, Liao et al. [93] ont estimé l'effet de la forme de la boîte quantique sur le mélange HH-LH. Ils ont en particulier déterminé les expressions analytiques du couplage  $\rho$  entre les états  $J_z = \pm 3/2$  et  $J_z = \mp 1/2$ , ainsi que l'écart énergétique  $\Delta_{HL}$ . Ces grandeurs s'écrivent:

$$\begin{aligned}\rho &\simeq \frac{4r_{\parallel}}{(1+r_{\parallel}^2)^2} \frac{\sqrt{3}\hbar^2\gamma_3}{4m_0} \frac{1}{l_y^2} \left(1 - \frac{1}{\eta_{\parallel}^2}\right) \\ \Delta_{HL} &\simeq \frac{1+r_{\perp}^2}{r_{\perp}^2} \frac{\hbar^2\gamma_2}{m_0} \frac{1}{l_z^2}\end{aligned}\tag{3.2.18}$$

avec  $l_x, l_y, l_z$  extension latérale de la fonction enveloppe  $\chi_v^{hh}$  et:

$$\begin{aligned}r_{\parallel} &= \left(\frac{\gamma_1 - \gamma_2}{\gamma_1 + \gamma_2}\right)^{1/4} & r_{\perp} &= \left(\frac{\gamma_1 + 2\gamma_2}{\gamma_1 - 2\gamma_2}\right)^{1/4} \\ \eta_{\parallel} &= \frac{l_x}{l_y} & \eta_{\perp} &= \frac{l_z}{l_y}\end{aligned}\tag{3.2.19}$$

Pour  $\gamma_1 = 7, \gamma_2 = 2$  et  $\gamma_3 = 3$ , on trouve  $r_{\parallel} = 0.86$  et  $r_{\perp} = 1.39$ . Il est alors possible d'estimer le coefficient  $\beta$  associé au mélange:

$$\beta = \frac{\rho}{\Delta_{HL}} = 0.48\eta_{\perp}^2 \left(1 - \frac{1}{\eta_{\parallel}^2}\right)\tag{3.2.20}$$

Pour des boîtes quantiques anisotropes obtenues dans des nanotrous [63], les tailles typiques sont:

$$\begin{aligned}l_x &= 40nm \\ l_y &= 20nm \\ l_z &= 2nm\end{aligned}$$

soit  $\eta_{\parallel} = 2$  et  $\eta_{\perp} = 0.1$ . Le coefficient de mélange vaut alors  $\beta = 4 \cdot 10^{-3}$ .

A nouveau, on observe un mélange HH-LH faible. Le peu d'influence de l'anisotropie de forme planaire a également été prédit par Luo et al [86], à l'aide d'un calcul atomistique (pour des tailles et formes typiques obtenues pour des boîtes quantiques InAs/GaAs ou GaAs/AlGaAs). Les deux analyses conduisent donc au même résultat.

### 3.2.3 Effet des contraintes

Dans les boîtes auto-assemblées, telles que InAs/GaAs, dont la formation est basée sur la différence des paramètres de maille, l'effet des contraintes, modélisé par l'hamiltonien Bir-Pikus  $H_{BP}$ , constitue la contribution la plus importante au mélange HH-LH [96]. Pour les boîtes sans contrainte GaAs/AlGaAs, l'influence de ce terme est négligeable. Cependant, il est possible d'introduire ces effets de contrainte de manière artificielle. L'application d'une contrainte mécanique (compression ou extension) à la structure change alors la symétrie effective des boîtes; une telle méthode a déjà été utilisée pour les boîtes InAs/GaAs [102] et aussi pour les boîtes GaAs/AlGaAs [103].

En changeant les termes de couplage de  $H_{BP}$ , il est possible de manipuler l'amplitude et la phase des coefficients des états propres excitoniques. Un effet spectaculaire est la rotation des diagrammes de polarisation de l'émission excitonique, avec des variations d'angle relatif de  $40^\circ$  à  $90^\circ$  associées à des valeurs du mélange de 0 à 70% [103].

Comme indiqué précédemment, dans les boîtes quantiques auto-assemblées, le mélange est essentiellement induit par les contraintes. Ceci est confirmé à la fois par:

- des calculs utilisant une approche  $k \cdot p$  couplée à une modélisation continue du champ de contrainte [104] et mettant en évidence un poids relatif LH de 10 à 15%
- des analyses utilisant un pseudopotentiel, dans une approche atomistique, comme les travaux récents de Luo et al. [86], qui prédisent que l'effet des contraintes représente quatre cinquièmes de la contribution au mélange dans des boîtes quantiques InAs/GaAs typiques, avec un poids relatif LH de 5 à 15%.

Enfin, ces mêmes travaux confirment que pour des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs, l'effet des contraintes sur le mélange HH-LH est nul et que pour nos structures à base de nanotrous d'autres mécanismes sont à rechercher.

### 3.2.4 Effet d'alliage

Lors de la croissance des boîtes quantiques, il peut apparaître une diffusion des matériaux à l'origine d'alliages, homogènes ou non. C'est en particulier le cas des boîtes quantiques  $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$  ou  $GaAs/Al_{1-y}Ga_yAs$ .

Dans le cas des boîtes quantiques  $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$  (ainsi que dans les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs), les effets d'alliage sont importants sur la structure fine de l'exciton [105] ou la polarisation optique [106], mais sont négligeables ( $<0.2\%$ ) sur le mélange HH-LH, comme calculé récemment [86].

A ce stade, nous avons passé en revue 4 contributions au mélange. Trois s'avèrent

négligeables ou faibles pour les boîtes quantiques considérées (confinement 3D, anisotropie planaire, alliage). Seul l'effet des contraintes a un effet significatif (et même majoritaire) pour les boîtes quantiques InAs/GaAs, mais nul pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs.

Nous allons donc maintenant nous intéresser aux brisures de symétrie, extrinsèques, liées aux interfaces, ou intrinsèques, associées à la structure cristallographique (blende de zinc pour InAs et GaAs).

Précédemment, la forme de la boîte quantique a été considérée afin d'estimer l'influence du confinement 3D et de l'anisotropie de forme sur le mélange. Nous n'avons pas pris en compte les interfaces et la réduction de symétrie qui peut en découler dans un cristal blende de zinc.

Dans les composés III-V étudiés, le cristal possède une structure blende de zinc, d'où une inéquivalence le long des axes  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$ . Dans un massif, la symétrie  $D_{2d}$  assure que le mélange HH-LH reste interdit. Pour des boîtes quantiques, la situation est différente. L'existence d'interfaces abaisse la symétrie, et nous allons discuter deux effets rencontrés dans les boîtes quantiques.

Ivchenko et al [107] ont ainsi montré que la symétrie  $C_{2v}$  de l'interface d'un puits quantique entraîne un mélange HH-LH ([81, 108, 109]). Ce mélange peut être amplifié dans une boîte quantique lorsque les deux interfaces ne sont pas symétriques (forme de lentille, cône, nanotrou...).

### 3.2.5 Effet des interfaces de basse symétrie

Utilisant une approche atomistique, l'effet d'une interface a été estimé par Luo et al [86], en modélisant dans un premier temps les boîtes quantiques par des cylindres (ou disques), donnant ainsi une symétrie  $D_{2d}$  à la forme de la boîte. L'approche pseudo-potentiel prédit un mélange HH-LH, dans les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs, avec une proportion LH de 2 à 4%. (figure 3.2.1 pour des boîtes GaAs en forme de disque - carrés verts)

### 3.2.6 Effet de la symétrie $C_{2v}$ de la boîte quantique associé à l'inéquivalence des directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$

Comme l'ont montré les mesures de STM ou microscopie électronique, les boîtes quantiques possèdent une forme ayant une symétrie plus basse que  $D_{2d}$ . Les lentilles, pyramides ou nanotrous ont une symétrie  $C_{2v}$ , ou plus faible en cas de déformation.

Lorsqu'on prend en compte cet effet de forme, la présence d'interfaces courbées accentue la non équivalence des axes  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$ . Luo et al [86] ont ainsi montré que,

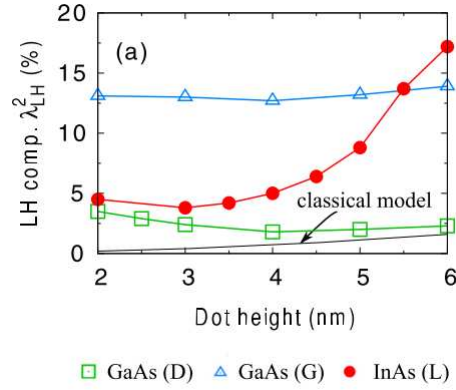


Figure 3.2.1: Poids relatif  $\lambda_{LH}^2 = \beta^2 + \gamma^2$  des composantes LH de l'état fondamental de trou pour des boîtes GaAs/AlGaAs en forme de disque (D) ou de profil gaussien (G), ainsi que pour des boîtes InAs/GaAs en forme de lentille (L). La base a un diamètre de 25 nm et la hauteur varie de 2 à 6 nm. Le modèle classique correspond au calcul de Fischer et Loss [92].

pour les boîtes quantiques avec un profil gaussien, la composante LH atteignait 13-14% pour des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs (figure 3.2.1). Il est ainsi possible de séparer la contribution des interfaces (2-4%) de l'inéquivalence des directions cristallographiques ( $\simeq 10\%$ ).

### Conclusion intermédiaire

Dans la gamme de taille de boîtes quantiques et de matériaux considérés (InAs/GaAs, GaAs/AlGaAs), les travaux théoriques récents sur le mélange HH-LH (pseudopotentiel atomistique, calcul  $k \cdot p$ ) semblent indiquer que:

- trois contributions ont un effet faible: confinement, anisotropie planaire, alliage
- les contraintes constituent l'effet dominant pour les boîtes quantiques auto-assemblées telles que InAs/GaAs. Luo et al [86] prédisent ainsi que 80% du mélange est induit par la différence de paramètre de maille et le champ de contrainte résultant
- les effets d'abaissement de symétrie ont un effet significatif mais minoritaire pour les boîtes quantiques InAs/GaAs, et sont à l'origine de l'essentiel du mélange HH-LH dans les boîtes quantiques non contraintes GaAs/AlGaAs. Du point de vue quantitatif, il semble que dans ce dernier système, le terme de couplage HH-LH a pour origine les interfaces, à  $\sim 40\%$ , et la symétrie intrinsèque  $C_{2v}$  des boîtes quantiques, à  $\sim 60\%$ .

### 3.2.7 Supercouplage

Bien que non significatif pour les boîtes quantiques non contraintes qui nous intéressent, il est intéressant de discuter un effet récemment mis en évidence par un calcul atomique [86]. Pour les boîtes quantiques InAs/GaAs autoassemblées, les états fondamentaux lourds



$HH_0$  et légers  $LH_0$  sont fortement séparés en énergie sous l'effet des contraintes. Il peut apparaître une densité d'états excités de trou lourd  $HH_m$  élevée entre  $HH_0$  et  $LH_0$ .

Médié par les états  $HH_m$ , le couplage entre  $HH_0$  et  $LH_0$  est amplifié via des termes d'interaction d'ordre supérieur. Ceci est clairement visible, pour un écart  $HH_0 - LH_0$  de l'ordre de 100 meV, comme rencontré dans les boîtes InAs/GaAs.

Luo et al [86] modélise cet effet de façon phénoménologique par une renormalisation de  $\Delta_{HL}$ , permettant de reproduire les résultats numériques du calcul atomistique (d'autres études numériques sont sans doute nécessaires). Les coefficients du mélange,  $\beta$  et  $\gamma$ , étant en  $1/\Delta_{HL}$  au premier ordre, une renormalisation (diminution) de  $\Delta_{HL}$  entraîne une augmentation du mélange HH-LH.

### 3.3 Effet du mélange sur l'émission excitonique polarisée

Avant de discuter des résultats expérimentaux de microphotoluminescence résolue en polarisation, nous allons présenter une modélisation du signal d'émission, en présence du mélange lourd-léger.

Comme présenté par Tonin et al [82, 83], il est possible d'accéder aux coefficients  $\beta$  et  $\gamma$  du mélange par des mesures non résonante et l'analyse de la polarisation de la photoluminescence, émise selon l'axe de croissance Oz ou selon le plan des boîtes xOy. Notre montage expérimental utilisant uniquement une excitation et une détection selon l'axe de croissance, nous n'avons accès qu'au coefficient  $\beta$ . Par souci de simplification, nous ne prendrons donc en compte, dans nos modélisations, que le mélange des états  $J_z = \pm 3/2$  avec des états  $J_z = \mp 1/2$  (les termes correctifs en  $\gamma^2$  étant négligeables).

#### 3.3.1 Couplage exciton-lumière

Considérons les états excitoniques brillants. En présence d'interaction d'échange coulombienne, les états propres excitoniques sont des combinaisons linéaires des états de base  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ .

$$\begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \end{cases} \quad (3.3.1)$$

et leur émission est polarisée selon les directions  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$ , respectivement.

L'élément de matrice associé à la transition optique s'écrit:

$$\begin{cases} \langle X | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}} (\langle +1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle - \langle -1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle) \\ \langle Y | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (\langle +1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle + \langle -1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle) \end{cases} \quad (3.3.2)$$

où  $\vec{E}$  est le champ électrique de la lumière, et  $\vec{\mu}$  est le moment dipolaire optique. Les intensités  $|\langle X | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$  et  $|\langle Y | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$  sont égales si l'excitation est non-résonante - ce qui est montré sur la figure 3.3.1 (a). Sur cette figure, nous voyons le diagramme qui correspond au potentiel de confinement aligné avec l'axe  $[1\bar{1}0]$ . Les deux branches correspondent à l'intensité des états propres excitoniques et sont perpendiculaires avec des maxima à  $0^\circ$  et à  $90^\circ$ . En l'absence de mélange, les diagrammes de polarisation de l'émission des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  ont même amplitude, de sorte que la somme des intensités est indépendante de l'angle et forme un cercle (en violet).

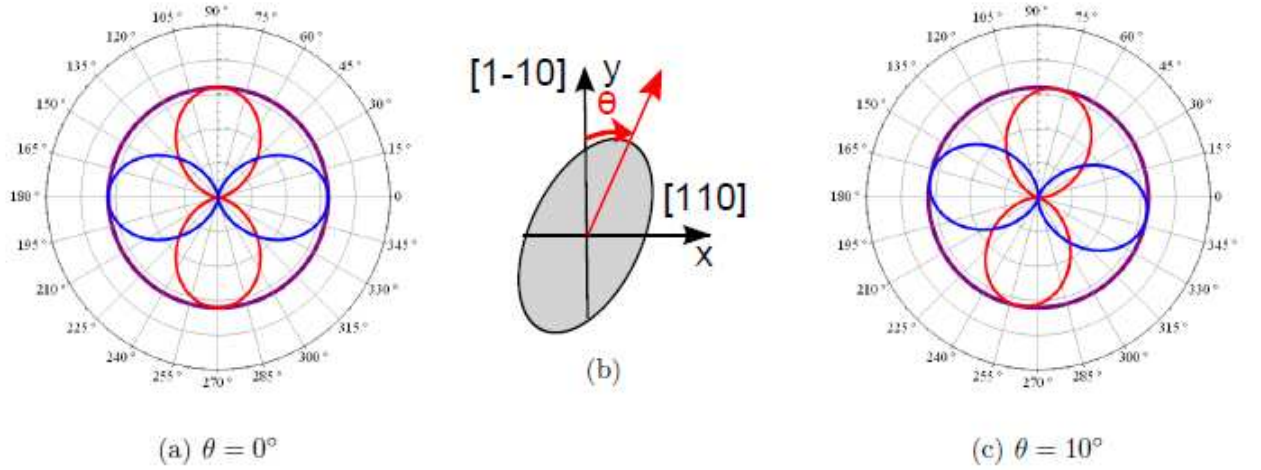


Figure 3.3.1: Diagrammes de polarisation des états propres (a) dans un potentiel aligné avec la direction  $[1\bar{1}0]$  et (c) dans un potentiel faisant un angle  $\theta = 10^\circ$ . En bleu - les états  $X$ , en rouge - les états  $Y$ , en violet - l'intensité totale. (b) Schéma du potentiel de confinement.  $\theta$  définit l'orientation de l'axe principal. [83]

Un cas plus général est obtenu lorsque le potentiel de confinement est non symétrique, avec des axes propres différents des axes cristallographiques. Il apparaît une phase dans les termes non-diagonaux de l'Hamiltonien d'échange. Posons  $\theta$ , l'angle entre la direction  $[1\bar{1}0]$  et le nouvel axe propre (figure 3.3.1 (b)). Ce terme de phase va modifier les états propres excitoniques:

$$\begin{cases} |X'\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}} (|+1\rangle - e^{2i\theta} |-1\rangle) \\ |Y'\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+1\rangle + e^{2i\theta} |-1\rangle) \end{cases} \quad (3.3.3)$$

Et les expressions pour l'émission vont être modifiées

$$\begin{cases} \langle X' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \frac{e^{i\theta}}{i\sqrt{2}} (\langle +1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle e^{-i\theta} - \langle -1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle e^{i\theta}) \\ \langle Y' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}} (\langle +1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle e^{-i\theta} + \langle -1 | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle e^{i\theta}) \end{cases} \quad (3.3.4)$$

Le résultat est présenté sur la figure 3.3.1 (c). La luminescence de chaque état est toujours polarisée linéairement, et les intensités  $|\langle X' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$  et  $|\langle Y' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$  sont égales, mais cette fois la direction ne correspond plus aux axes cristallographiques, mais est fixée par l'angle  $\theta$ . L'axe de polarisation linéaire de l'émission fait ainsi un angle  $\theta$  avec les axes cristallographiques  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$  et cet angle est le même pour les deux états, qui restent perpendiculaires. La somme des intensités est toujours circulaire. Les résultats expérimentaux montrent que ce n'est pas toujours le cas, et que l'angle relatif peut changer. Nous allons introduire les effets du mélange pour expliquer ces différences.

### 3.3.2 Effet du mélange et émission polarisée

Limité au mélange entre les états  $J_z = \pm 3/2$  et les états  $J_z = \mp 1/2$ , les états propres modifiés s'écrivent [82, 83] :

$$\begin{cases} |+\tilde{1}\rangle : & \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} \left[ \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \beta e^{+2i\psi} \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right] \\ |-\tilde{1}\rangle : & \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} \left[ \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \beta e^{-2i\psi} \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right] \end{cases} \quad (3.3.5)$$

$\theta$  est l'angle entre la direction  $[\bar{1}\bar{1}0]$  et l'orientation du potentiel de confinement de la boîte. On s'intéresse ensuite à l'émission des états excitoniques  $|\tilde{X}\rangle$  et  $|\tilde{Y}\rangle$  et à l'intensité normalisée transmise par un polariseur linéaire orienté selon un axe faisant un angle  $\alpha$  avec la direction  $[110]$ . Ces intensités s'écrivent:

$$\begin{cases} I_{\tilde{X}}(\alpha) = [\sqrt{1-\beta^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \\ I_{\tilde{Y}}(\alpha) = [\sqrt{1-\beta^2} \sin(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta)]^2. \end{cases} \quad (3.3.6)$$

L'intensité totale, qui est la somme des composantes  $I_{\tilde{X}}$  et  $I_{\tilde{Y}}$ , s'écrit:

$$I_{tot}(\alpha) = 1 - \frac{2}{3}\beta^2 - 2\beta \sqrt{\frac{1-\beta^2}{3}} \cos(2(\alpha + \psi)) \quad (3.3.7)$$

Cette intensité totale dépend de deux paramètres du mélange,  $\beta$  et  $\psi$ .  $\beta$  rend compte de la proportion des trous légers. Si  $\beta$  est égal à 0, il n'y a pas de mélange, et le diagramme de polarisation est un cercle. Pour les valeurs non-nulles,  $\beta$  définit le contraste entre les deux états.  $\psi$  définit la direction principale de polarisation avec  $[1\bar{1}0]$ . La formule obtenue par C.Tonin [82, 83] pour le degré de polarisation linéaire (C) selon l'axe défini par  $\psi$  de l'intensité totale s'écrit:

$$C(\beta) = \frac{2\beta\sqrt{3(1-\beta^2)}}{3-2\beta^2}. \quad (3.3.8)$$

La forme (mais pas l'orientation) du diagramme de l'intensité totale dépend ainsi du paramètre de mélange  $\beta$ .

Nous allons aussi définir deux angles,  $\phi_x$  et  $\phi_y$ .  $\phi_x$  est l'angle de l'état  $|\tilde{X}\rangle$  par rapport à l'axe  $[110]$ , et  $\phi_y$  est l'angle de l'état  $|\tilde{Y}\rangle$  et l'axe  $[1\bar{1}0]$ . Les expressions pour  $\phi_x$  et  $\phi_y$  sont des fonctions des paramètres  $\beta, \theta$  et  $\psi$ . Pour les simplifier, C.Tonin et al. introduisent un paramètre  $\eta = \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\beta}{\sqrt{1-\beta^2}}$ , et ces expressions s'écrivent:

$$\begin{aligned} \tan(\phi_x) &= \frac{-\sin\theta + \eta \sin(2\psi - \theta)}{\cos\theta - \eta \cos(2\psi - \theta)} \\ \tan(\phi_y) &= -\frac{\sin\theta + \eta \sin(2\psi - \theta)}{\cos\theta + \eta \cos(2\psi - \theta)} \end{aligned} \quad (3.3.9)$$

La figure 3.3.2 montre les angles utilisés sur un diagramme de polarisation modélisé par C.Tonin [83].

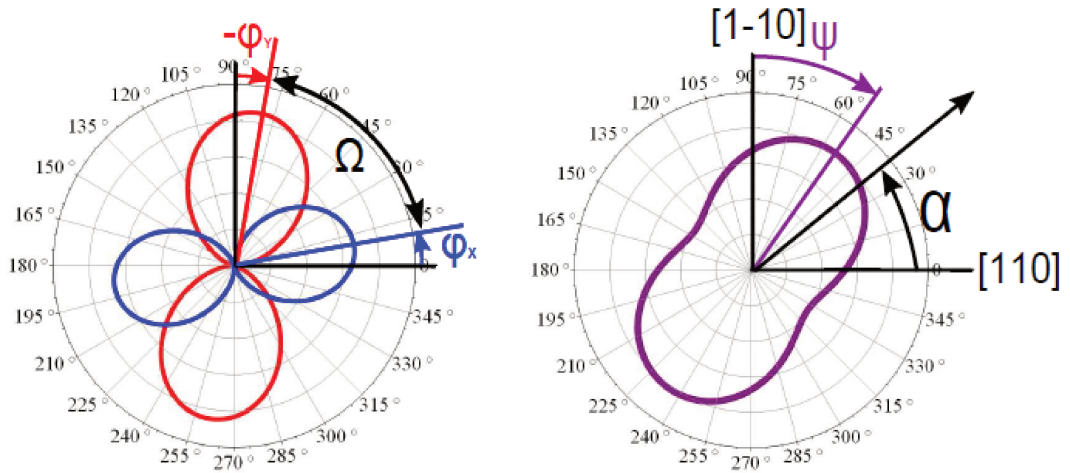


Figure 3.3.2: Modélisation d'un diagramme de polarisation faite par C.Tonin [83] pour (a) des états propres  $|\tilde{X}\rangle$  et  $|\tilde{Y}\rangle$  et (b) leur somme (l'émission totale). Les angles  $\alpha$  du polariseur d'analyse, ainsi que  $\phi_x$ ,  $\phi_y$  et  $\psi$ , sont montrés. Paramètres utilisés dans cette simulation:  $\theta = 0^\circ$ ,  $\beta = 0.25$ ,  $\psi = 35^\circ$ .

Les diagrammes d'intensité totale de luminescence permettent de calculer les paramètres  $\beta$  et  $\psi$  mais pas les directions  $\phi_x$  et  $\phi_y$  des états excitoniques, ni l'orientation  $\theta$  de potentiel de confinement. Pour trouver ces valeurs, il faut utiliser les expressions pour les intensités des composantes  $I_{\bar{X}}(\alpha)$  et  $I_{\bar{Y}}(\alpha)$  (équations 3.3.6).

Nous appuyant sur cette modélisation de la polarisation de l'émission de boîtes quantiques, nous allons maintenant analyser le signal émis par deux familles de boîtes quantiques, InAs/GaAs et GaAs/AlGaAs.

### 3.4 Boîtes InAs/GaAs

L'échantillon étudié a été obtenu par la méthode Stranski-Krastanov. Les boîtes sont intégrées dans une cavité formée par deux séries de miroirs de Bragg. Le mode de cavité est accordé avec l'énergie d'émission des boîtes.

Nous allons présenter les résultats de photoluminescence de boîtes uniques discernables qui ont fait l'objet de séries d'acquisitions indépendantes, la zone excitée ayant à chaque fois une taille de  $\sim 2 - 3 \mu m^2$ . Un spectre typique est présenté sur la figure 3.4.1. Nous voyons typiquement une dizaine de raies qui correspondent aux boîtes dans la région sous le faisceau laser. Avec des contrôleur piézoélectriques, nous pouvons mettre une boîte particulière au centre du faisceau laser afin d'optimiser son signal émis. La puissance d'excitation est choisie afin d'avoir un minimum de raies pour être en régime de basse puissance, sans exciter les états chargés ( $X^+$ ,  $X^-$ ), ou biexcitoniques ( $XX$ ). Les boîtes émettent dans une région spectrale de 16 meV en largeur, entre 910 et 927 nm. La raie (ou, en toute rigueur, 2 raies séparées par l'interaction d'échange) la plus forte correspond aux états brillants excitoniques d'une boîte quantique. Les autres raies viennent des autres boîtes excitées sous le même spot laser.

Pour faire une analyse de polarisation linéaire de la photoluminescence, nous utilisons une lame  $\lambda/2$  installée dans une monture tournante suivie par un polariseur linéaire fixe. Un programme Labview (description dans le chapitre 2) pilote cette monture et la fait tourner. Pour chaque angle, nous faisons une acquisition. En répétant cette procédure pour des angles dans un intervalle de 0 à 180 degrés, relativement à la position de départ, nous pouvons construire un diagramme de polarisation (ce qui permet une analyse en polarisation linéaire de 0 à 360°). Un exemple des spectres que nous obtenons est présenté sur la figure 3.4.2.

Le splitting de structure fine des boîtes analysées est de quelques dizaines de  $\mu eV$ , et avec notre résolution spectrale de  $15 \mu eV$ , nous pouvons facilement séparer les deux états, soit directement, soit avec des ajustements. Cette boîte a un FSS de  $43 \mu eV$ , et

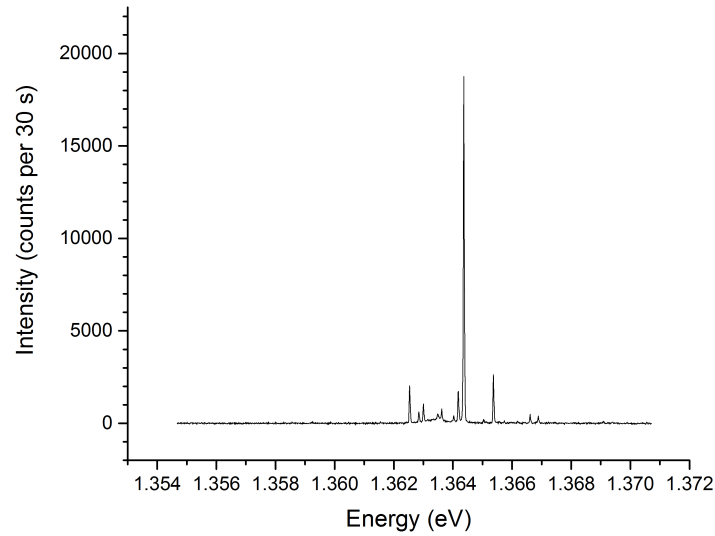


Figure 3.4.1: Spectre de photoluminescence de l'échantillon InAs avec le faisceau du laser centré sur une boîte. La densité des boîtes de cet échantillon permet d'étudier des boîtes uniques. Excitation à 638 nm avec la puissance 40  $\mu$ W

nous voyons les deux états bien séparés. Les 5 positions de  $\lambda/2$  correspondent aux angles d'émission  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $120^\circ$ . Si pour  $0^\circ$  (noir) nous obtenons le minimum d'un pic, la courbe qui correspond à  $120^\circ$  (rouge) n'est pas exactement comme pour  $60^\circ$  ce qui indique déjà un décalage des axes de polarisation. Dans la figure 3.4.2, (b) est l'image en code couleur de cette même boîte avec toutes les acquisitions de 0 à  $350^\circ$ .

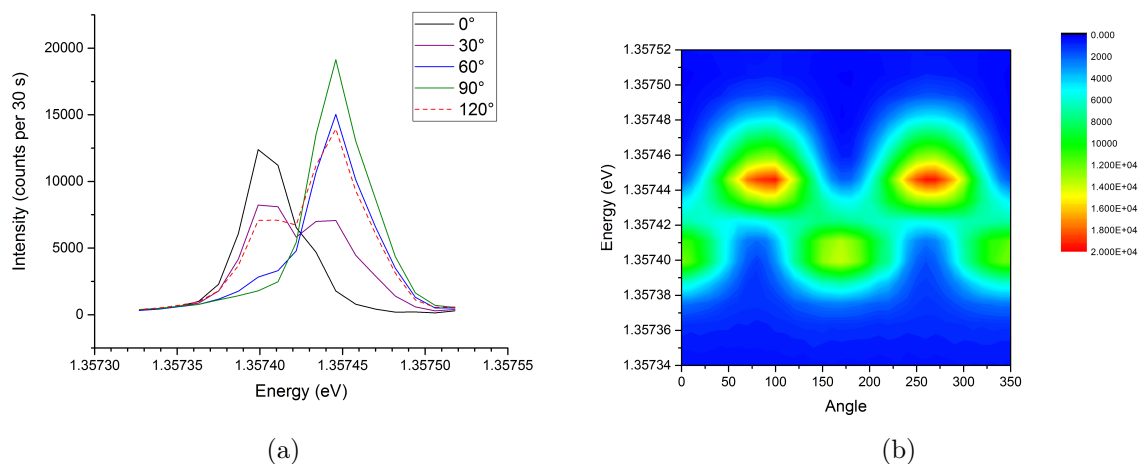


Figure 3.4.2: Exemple de spectre de microphotoluminescence résolue en polarisation. (a) - spectres 1D pour les angles d'analyse de la polarisation de  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $120^\circ$ . (b) - spectre 2D-couleur pour cette même boîte.

Nous allons faire des ajustements pour toutes les boîtes pour obtenir des résultats plus précis. Pour trouver les valeurs précises des positions en énergie et l'intensité de

photoluminescence, nous avons fait des modélisations avec des fonctions lorentziennes. Nous obtenons alors l'intensité totale de l'émission de chaque composante, leur somme donnant l'intensité totale. Pour chaque composante, nous trouvons la position angulaire où l'intensité est maximale ou proche de maximum, ce qui correspond typiquement à la basse intensité de la deuxième composante. Les images 3.4.3 (c) et (e) présentent un exemple de deux ajustements: (c) correspond à la position  $0^\circ$  (où l'intensité du pic bleu est haute) et (e) à la position  $90^\circ$  (proche du maximum d'intensité pour le pic rouge). Ayant trouvé les propriétés des deux pics séparément, nous utilisons la position spectrale et la largeur de raie pour ajuster l'intensité pour tous les angles. Un exemple d'un ajustement pour une position intermédiaire ( $30^\circ$ ) est présenté dans la figure 3.4.3 (d).

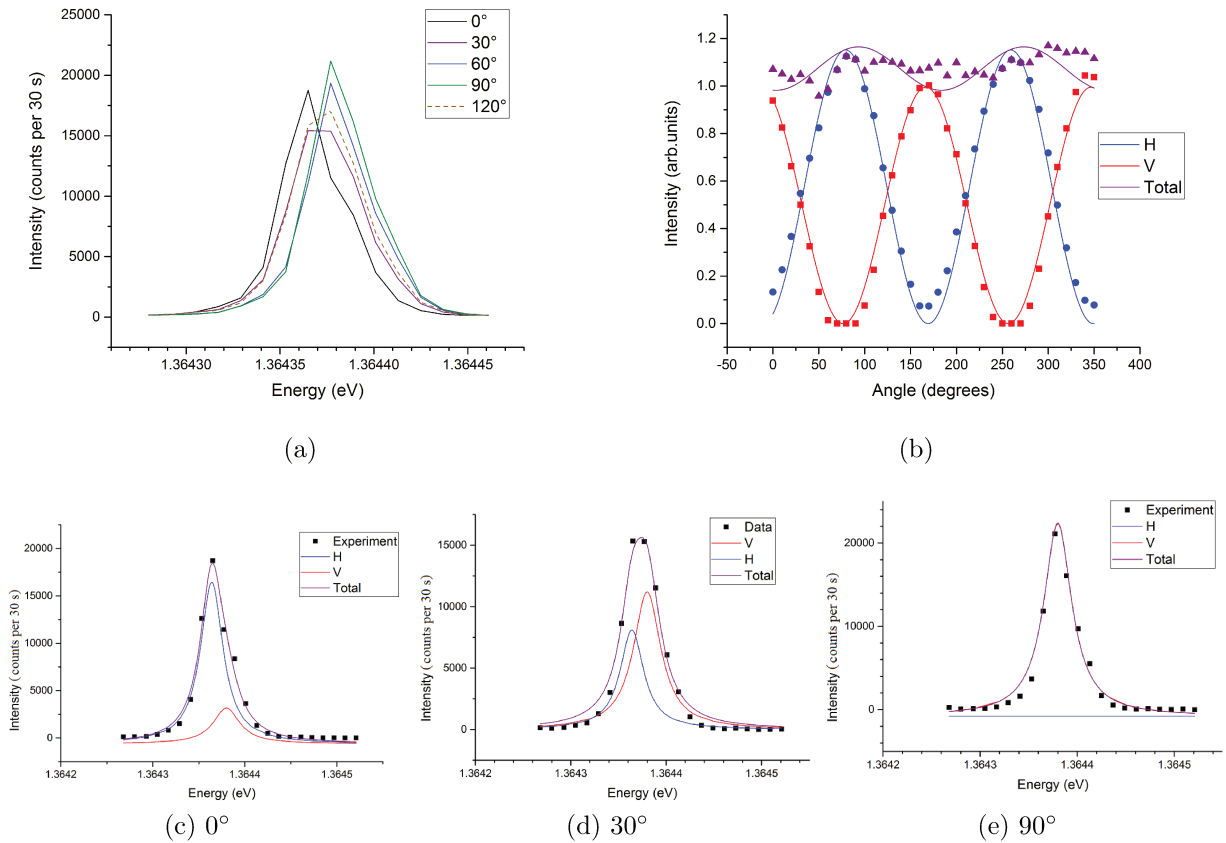


Figure 3.4.3: Exemple de spectres de microphotoluminescence résolue en polarisation pour une boîte avec un faible  $\delta_1$ . (a)- spectres 1D pour les angles d'analyse de la polarisation de  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $120^\circ$ . Le FSS de  $16\mu\text{eV}$  correspond à 1 pixel d'écart entre les pics. (b) - ajustement pour les intensités des états H (bleu), V (rouge) et l'intensité totale (violet). (c)-(e) - trois ajustements pour les angles  $0^\circ$ ,  $30^\circ$  et  $90^\circ$ . Points - les points expérimentaux; lignes - fonctions d'ajustement.

Avec l'expression 3.3.7, nous pouvons accéder aux paramètres  $\beta$  et  $\psi$ . Ensuite, utilisant les expressions 3.3.6 avec les valeurs  $\beta$  et  $\psi$  déjà ajustées il est possible de déterminer les valeurs  $\phi_x$ ,  $\phi_y$  et  $\theta$ . La figure 3.4.3 (b) montre le résultat d'un ajustement pour toute la série d'angle ( $0 - 360^\circ$ ) pour une boîte avec un FSS faible ( $16\mu\text{eV}$ , ce qui correspond

à 1 pixel) (fig. 3.4.3 (a)).

Dans la figure 3.4.4, sont présentés les résultats pour 3 boîtes qui montrent l'évolution des diagrammes en fonction de  $\beta$  et  $\psi$ . Une valeur de  $\beta$  forte contracte le diagramme et  $\psi$  correspond à la rotation du diagramme d'intensité totale. Ici sont présentées trois boîtes avec un  $\beta$  différent. Pour une valeur faible de  $\beta$  ( $\beta = 0.038$ ), le diagramme est presque circulaire. L'augmentation de  $\beta$  va allonger le diagramme qui donne l'intensité totale (courbes violettes). Ce comportement apparaît progressivement pour la deuxième boîte avec  $\beta = 0.125$  et est encore plus marqué pour la troisième boîte, avec  $\beta = 0.231$ . Dans le même temps, nous voyons que les diagrammes d'intensité totale tournent d'un angle  $\psi$  qui, dans cette série, varie de  $-39^\circ$  pour la première boîte à  $-1^\circ$  pour la troisième boîte.

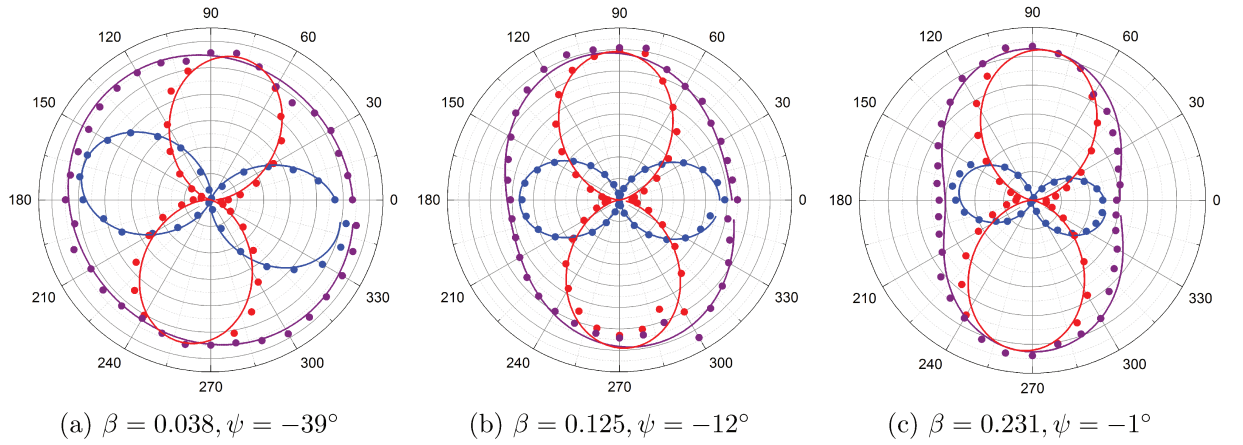


Figure 3.4.4: Intensité de l'émission polarisée de différentes boîtes quantiques en fonction de l'angle d'analyse. Ajustement des résultats expérimentaux pour trois boîtes InAs/GaAs. En bleu - l'état X, en rouge - l'état Y, en violet - l'intensité totale. Points - points expérimentaux, lignes - fonctions d'ajustement.

Le tableau récapitulatif pour 8 boîtes est présenté ci-dessous (3.1):

Numéro de boîte	E (eV)	$\delta_1$ ( $\mu\text{eV}$ )	$\beta$	$\psi$	$\theta$	$\phi_x$	$\phi_y$
1	1.36288	55	0.125	-12	1	-1	2.5
2	1.34390	16	0.038	-39	13	-12.9	-10.8
3	1.35861	32	0.171	51	-15	17.3	6.6
4	1.35707	81	0.132	-6	-2	-7.8	3.1
5	1.35743	43	0.231	-1	7	-9.2	-4.4
6	1.36253	33	0.029	32	-10	10.7	8.7
7	1.36131	69	0.111	-4	-6	6.9	6.3
8	1.36006	73	0.064	-90	-3	5.4	1.3

Table 3.1: Tableau récapitulatif des paramètres de mélange obtenus pour 8 boîtes quantiques InAs/GaAs.

Le FSS varie de 16 à 81  $\mu\text{eV}$  (ceci correspond à 1-5 pixels avec notre résolution)



Les valeurs de  $\beta$  sont comprises entre 0.03 et 0.23. Ces valeurs sont en particulier très proches de celles déterminées par C.Tonin [82, 83] avec une large statistique, et un paramètre  $\beta$  compris entre 0.02 et 0.3.

Les valeurs de  $\psi$  sont comprises entre  $-90^\circ$  et  $51^\circ$  ( $-90^\circ$  et  $90^\circ$  sont équivalents). Avec des valeurs comprises entre  $-15^\circ$  et  $13^\circ$ ,  $\theta$ , qui décrit la forme générale du potentiel de confinement, est moins dispersé que  $\psi$ .  $\theta$  dépend des contraintes ainsi que de la forme de la boîte et ce résultat semble indiquer une certaine homogénéité des paramètres sur cet échantillon (à confirmer par une statistique plus large). Comme les acquisitions sont réalisées dans des zones différentes de l'échantillon, nous observons des valeurs différentes pour  $\psi$  et  $\theta$ . Lorsque les boîtes sont adjacentes (sous un même spot laser), il semble que ces paramètres puissent être corrélés, le champ de contrainte étant susceptible d'être homogène à l'échelle de  $1 \mu\text{m}^2$  [82, 83]. Un tel comportement est en accord avec le rôle dominant joué par les contraintes dans le couplage entre les états HH et LH, et l'apparition d'un mélange quantifié par le paramètre  $\beta e^{2i\psi}$ . Ce rôle majeur des contraintes, qui contribue à 80% au mélange est bien prédit [86].

## 3.5 Boîtes GaAs/AlGaAs

Ayant validé nos expériences et analyses sur un système de référence, les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs, nous nous sommes ensuite intéressés à la nouvelle famille de boîtes quantiques fabriquées sans contraintes dans des nanotrous. Pour ces boîtes GaAs/AlGaAs, nous utilisons aussi une excitation non-résonante à 640 nm, qui est cette fois au-dessous de l'énergie du gap de AlGaAs.

### 3.5.1 Paramètres des échantillons

Ce travail de thèse a été l'occasion de caractériser un nombre important d'échantillons, testant ainsi différentes conditions de croissance. A l'issue de cette phase de caractérisation, nous nous sommes concentrés essentiellement sur deux échantillons. Leurs paramètres sont donnés dans le tableau suivant:

Couche	Composition	Epaisseur (1)	Epaisseur (2)
Buffer	$GaAs$	300 nm	300 nm
Nanohole formation	$Ga$	X monocouches	X m/c
Recristallization	$As$	-	-
Barrier	$Al_{0.44}Ga_{0.56}As$	7 nm	7 nm
QD layer	$GaAs$	0.75 nm	1.5 nm
Barrier	$Al_{0.375}Ga_{0.625}As$	70 nm	70 nm
Cladding layer	$Al_{0.44}Ga_{0.56}As$	20 nm	20 nm
Cap	$GaAs$	20 nm	20 nm

Table 3.2: Composition des échantillons de boîtes quantiques  $GaAs/AlGaAs$  utilisés pour nos études du paramètre de mélange HH-LH.

Ces deux échantillons sont similaires; la seule différence est l'épaisseur de la couche qui forme les boîtes. L'épaisseur des boîtes selon l'axe de croissance est donc différente, ce que se traduit par un confinement différent selon Oz. Rappelons-nous que la différence d'épaisseur nominale n'est pas directement corrélée à la différence réelle de hauteur des boîtes parce que les atomes du matériau migrent préférentiellement vers le fond du trou lors de la croissance, ce qui augmente l'épaisseur finale.

Un exemple de spectre de photoluminescence de l'échantillon (1) est sur la figure 3.5.1. Les boîtes émettent à 1.655 eV (750 nm), avec une dispersion en énergie de 20 meV. La densité de boîtes ( $1 - 2/\mu m^2$ ) est plus grande que sur l'échantillon InAs, mais il

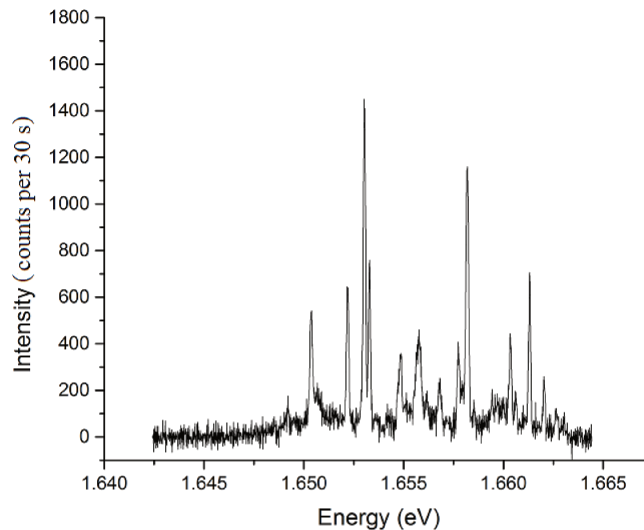


Figure 3.5.1: Un spectre de photoluminescence de l'échantillon (1) avec des boîtes  $GaAs/AlGaAs$  synthétisées par nanotrous. Excitation à 638 nm avec la puissance 40  $\mu W$

est possible d'identifier des boîtes uniques. La majorité des états observés sont des états d'exciton neutre (polarisation linéaire); occasionnellement, des raies de trions (polarisation circulaire) sont détectées.

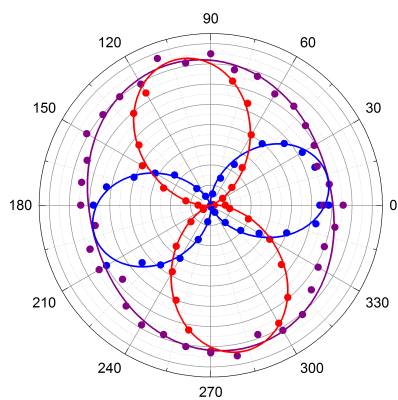
Numéro de boîte	E (eV)	$\delta_1$ ( $\mu\text{eV}$ )	$\beta$	$\psi$	$\theta$	$\phi_x$	$\phi_y$
1	1.66204	87	0.049	-37	-11	-11.5	-13.9
<b>2</b>	<b>1.66128</b>	<b>71</b>	<b>0.085</b>	<b>-15</b>	<b>-12</b>	<b>-13.0</b>	<b>-13.2</b>
<b>3</b>	<b>1.66027</b>	<b>127</b>	<b>0.278</b>	<b>-20</b>	<b>-13</b>	<b>-17.5</b>	<b>-18.5</b>
4	1.65815	61	0.062	1	-13	-13.7	-11.8
5	1.65767	84	0.094	-45	-4	-3.2	-8.7
6	1.65473	91	0.066	5	-12	-13.8	-9.8
<b>7</b>	<b>1.65325</b>	<b>61</b>	<b>0.127</b>	<b>-20</b>	<b>-17</b>	<b>-18.7</b>	<b>-18.8</b>
<b>8</b>	<b>1.65297</b>	<b>80</b>	<b>0.108</b>	<b>-61</b>	<b>6</b>	<b>5.6</b>	<b>-1.3</b>
9	1.65222	48	0.067	-39	-3	-3.6	-7.4
10	1.65833	110	0.101	2	-17	-19.2	-14.8
11	1.65628	62	0.038	26	-11	-11.0	-8.7
12	1.65509	41	0.052	-42	0	-0.5	-3.6
13	1.65338	55	0.088	37	-8	-8.3	-2.3
14	1.65894	60	0.128	-22	13	14.2	7.1
15	1.65866	57	0.059	-28	0	-0.2	3.1
16	1.65478	78	0.08	-28	-8	-9.2	-11.8
17	1.64907	86	0.034	-19	-9	-9.5	-10.5
18	1.66073	58	0.204	6	-5	-3.6	5.8
19	1.65972	77	0.051	-36	-3	-2.7	-5.4
20	1.65851	33	0.052	41	-15	-15.5	-12.8
21	1.65663	70	0.088	-16	-17	-18.9	-10.7
22	1.65462	49	0.174	-27	-4	-6.8	-12.9
<b>23</b>	<b>1.65095</b>	<b>60</b>	<b>0.288</b>	<b>-3</b>	<b>-5</b>	<b>-6.8</b>	<b>-5.1</b>

Table 3.4: Tableau récapitulatif des paramètres de mélange obtenus pour 23 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs sur l'échantillon (1).

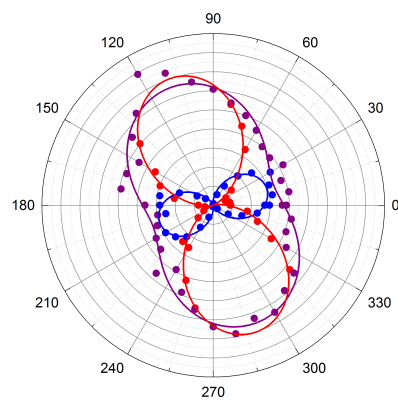
### 3.5.2 Polarisation de l'émission excitonique

Pour analyser les boîtes GaAs/AlGaAs, nous utilisons la même méthode que pour les boîtes InAs (cf section précédente). Les résultats des expériences sur l'échantillon (1) AlGaAs, avec l'épaisseur nominale de boîte 0.75 nm, sont présentés dans le tableau récapitulatif 3.4. Nous allons voir les diagrammes polaires correspondant aux boîtes 2, 3, 7, 8 et 23 (en gras).

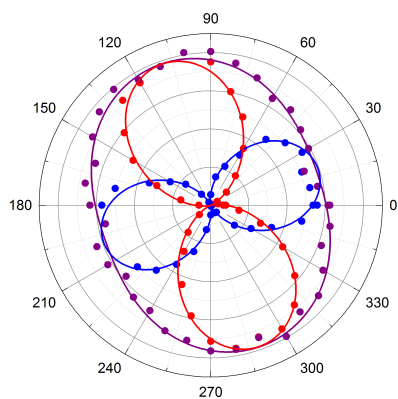
Nous avons obtenu des valeurs de  $\beta$  comprises entre 0 et 0.3, ce qui est comparable aux résultats obtenus sur les boîtes GaAs/AlGaAs de type droplet [101], elles aussi sans contrainte. Les diagrammes polaires pour différents paramètres du mélange sont donnés sur la figure 3.5.2 (boîtes 2, 3, 7, 8, 23 du tableau 3.4).



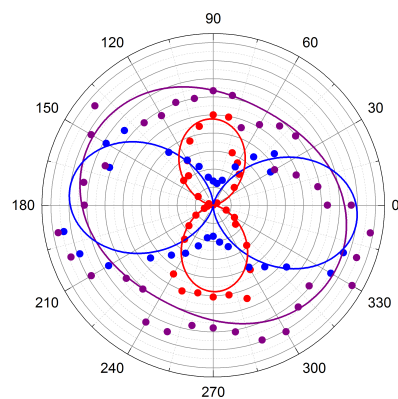
(a)  $\beta = 0.085, \psi = -15^\circ$



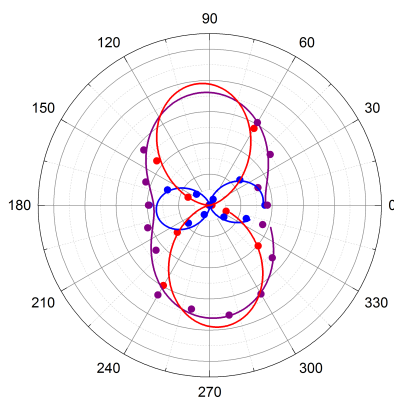
(b)  $\beta = 0.278, \psi = -20^\circ$



(c)  $\beta = 0.127, \psi = -20^\circ$



(d)  $\beta = 0.108, \psi = -61^\circ$



(e)  $\beta = 0.288, \psi = -3^\circ$

Figure 3.5.2: Diagrammes de l'émission polarisée de boîtes GaAs/AlGaAs (nanotrous) avec les paramètres de mélange associés.

### 3.5.3 Statistique et comparaison InAs versus GaAs/AlGaAs

Nous allons nous intéresser à la dispersion des valeurs du mélange pour les boîtes GaAs/AlGaAs, le nombre de boîtes analysées sur l'échantillon (1) permettant une certaine statistique. Il est en particulier intéressant de comparer avec les boîtes contraintes InAs/GaAs.

L'histogramme de  $\beta$  est présenté sur la figure 3.5.3. Les valeurs pour les boîtes GaAs/AlGaAs sont moins dispersées que pour les boîtes InAs. Les boîtes InAs/GaAs (figure 3.5.3 (a)) ont une dispersion assez homogène de 0 à 0.45, le maximum étant autour de  $\approx 0.1$ . Le nombre des boîtes diminue graduellement pour de plus grandes valeurs de  $\beta$ . Les boîtes GaAs/AlGaAs (figure 3.5.3 (b)) ont une dispersion de  $\beta$  plus étroite, la plupart des boîtes ayant  $\beta \approx 0.08$ . Même si le nombre des boîtes étudiées est relativement modeste, nous pouvons conclure que le nombre des boîtes avec  $\beta > 0.15$  diminue rapidement.

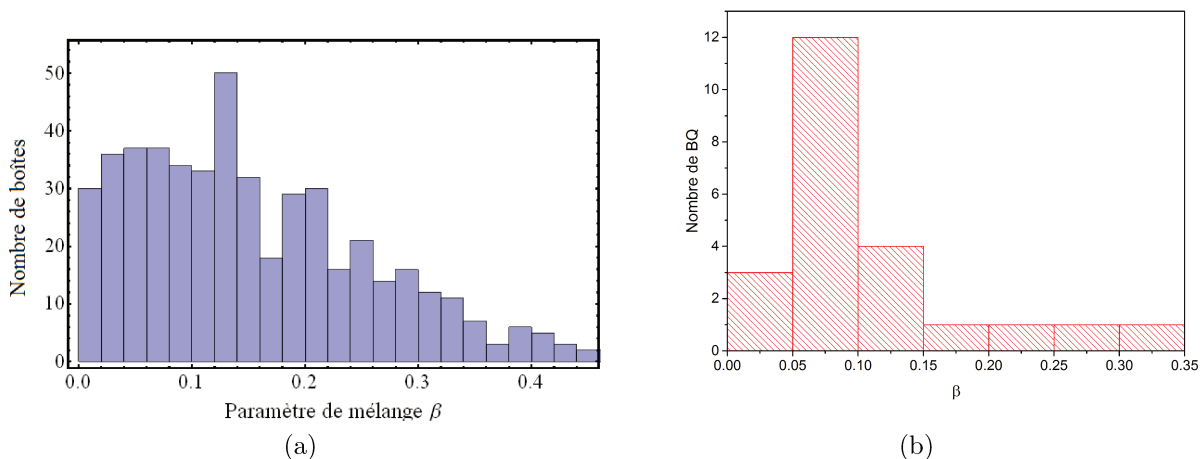
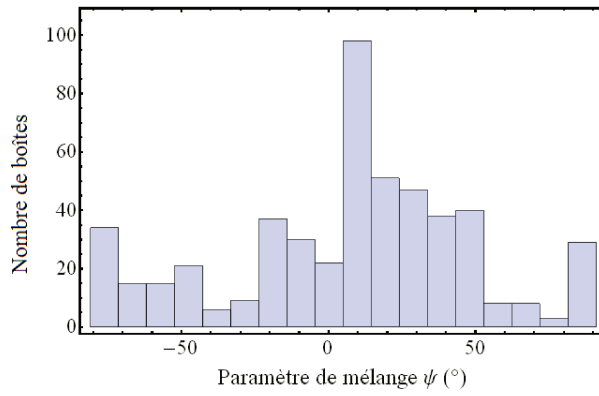


Figure 3.5.3: Distribution du paramètre  $\beta$ : (a) résultats obtenus par C.Tonin pour les boîtes InAs/GaAs auto-assemblées [83]; (b) résultats pour des boîtes GaAs/AlGaAs dans des nanotrous.

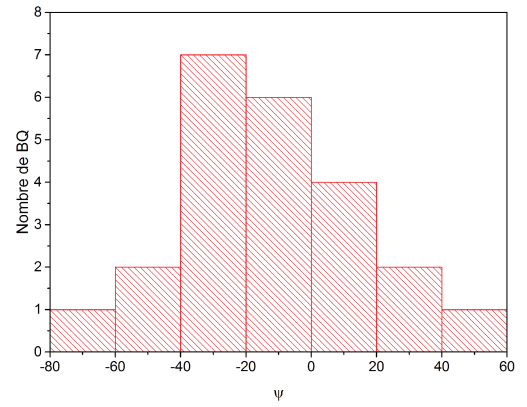
Pour les boîtes GaAs/AlGaAs, les valeurs de  $\psi$  varient de  $-60^\circ$  à  $40^\circ$  (figure 3.5.5). La valeur 0 correspond à une orientation verticale du diagramme. Nous avons obtenu une distribution similaire à celle obtenue pour des boîtes InAs/GaAs [83], avec des valeurs qui peuvent être assez grandes (jusqu'au  $90^\circ$ ) mais avec un axe prioritaire à  $\approx -25^\circ$ .

Les angles  $\phi_x$  et  $\phi_y$  se trouvent dans l'intervalle entre  $-20^\circ$  et  $15^\circ$  avec, dans les deux cas, une valeur moyenne d'environ  $-10^\circ$  (figure 3.5.5).

L'énergie d'émission étant directement liée au confinement, et le splitting d'échange (FSS) étant sensible au mélange HH-LH, nous avons tracé le paramètre  $\beta$  en fonction de l'énergie de l'exciton ou du FSS. Ces courbes sont représentées sur la figure 3.5.6, à la fois pour les boîtes InAs/GaAs de cette étude et les boîtes GaAs/AlGaAs. Ces courbes

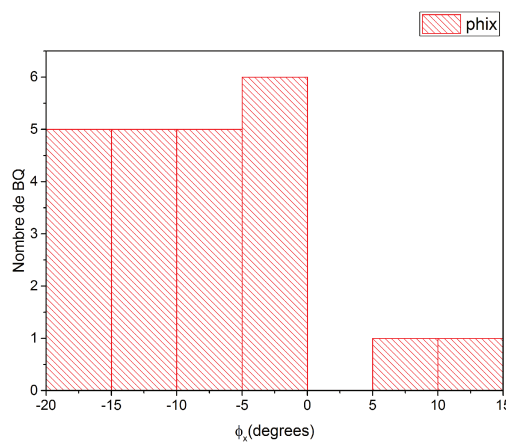


(a)

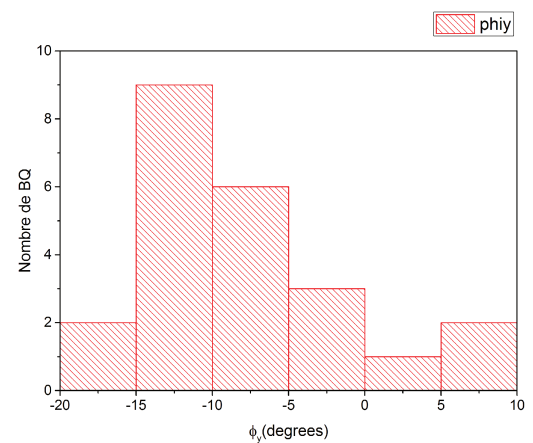


(b)

Figure 3.5.4: Distribution du paramètre  $\psi$ : (a) résultats obtenus par C.Tonin pour les boîtes InAs/GaAs auto-assemblées [83]; (b) résultats pour des boîtes GaAs/AlGaAs dans des nanotrous.

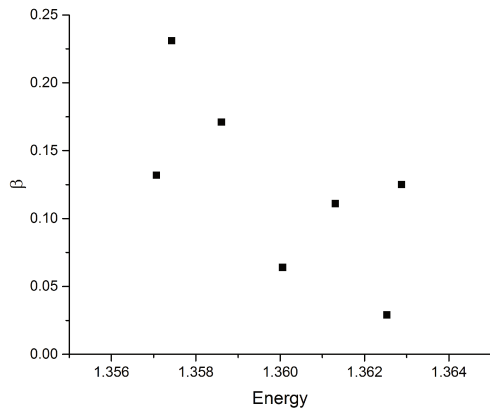


(a)  $\phi_x$

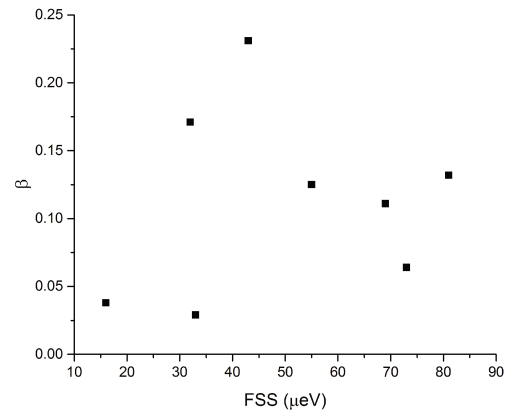


(b)  $\phi_y$

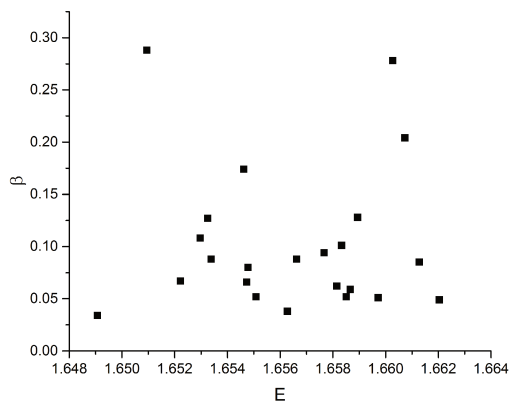
Figure 3.5.5: Distribution des paramètres  $\phi_x$  (a) et  $\phi_y$  (b) pour les boîtes GaAs/AlGaAs.



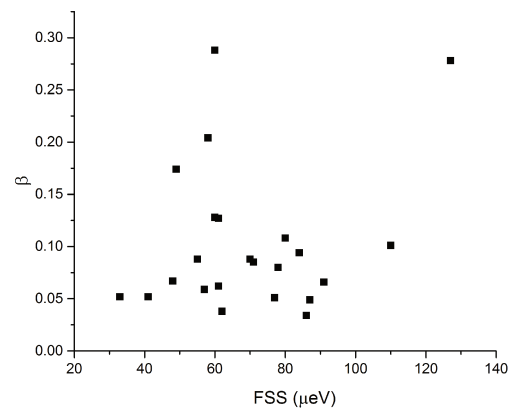
(a) InAs/GaAs



(b) InAs/GaAs



(c) GaAs/AlGaAs



(d) GaAs/AlGaAs

Figure 3.5.6: (a, c) paramètre du mélange  $\beta$  en fonction de l'énergie d'émission pour les boîtes InAs/GaAs (cette étude) et GaAs/AlGaAs (b,d) paramètre de mélange  $\beta$  en fonction de splitting d'échange ( $\delta_1$ ) pour les boîtes InAs/GaAs (cette étude) et GaAs/AlGaAs.

mettent en évidence la plus grande homogénéité de  $\beta$ , dans les boîtes GaAs/AlGaAs, le “nuage” de points étant clairement centré vers  $\beta \approx 0.08$ . Aucune corrélation n'apparaît entre  $\beta$  et les autres grandeurs (énergie, FSS). A noter que la gamme d'énergie explorée est réduite; cependant Tonin [82], sur une gamme spectrale plus large (900 à 950 nm), n'a observé aucune corrélation pour des boîtes InAs/GaAs. La relation entre ces différents paramètres n'est donc pas simple.

Bien que de moins bonne qualité, l'échantillon (2) a permis de mesurer l'importance du mélange  $\beta$  dans une autre famille de boîtes GaAs/AlGaAs, moins confinées. La figure 3.5.7 montre les deux histogrammes correspondants.

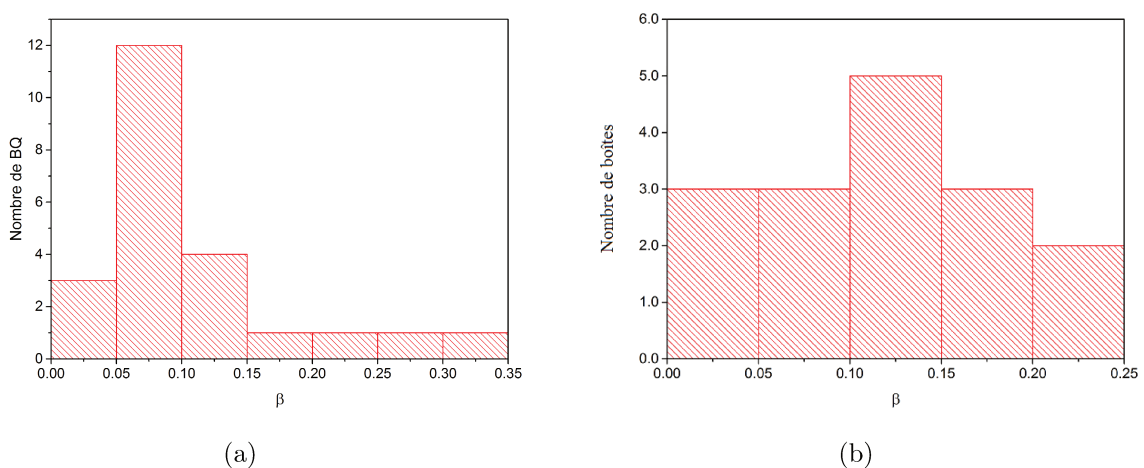


Figure 3.5.7: Histogramme du paramètre  $\beta$ : résultat obtenu pour (a) l'échantillon (1) avec l'épaisseur nominale de la couche des boîtes 0.75 nm (b) l'échantillon (2) pour une épaisseur nominale de 1.5 nm.

Le diagramme pour le deuxième échantillon est fait à partir de 15 boîtes analysées (l'erreur introduite par ce petit nombre peut être significative). Nous observons une légère augmentation de la valeur moyenne de  $\beta$  de 0.1 pour l'échantillon (1) à 0.12 pour l'échantillon (2). D'après les expressions 3.2.16, 3.2.17 qui modélisent l'effet du confinement,  $\beta$  doit augmenter si l'épaisseur de la boîte quantique augmente. Cependant, pour les tailles de boîtes quantiques considérées, le coefficient théorique  $\beta$  reste beaucoup plus faible que la valeur expérimentale.

Les travaux théoriques discutés précédemment attribuent le mélange aux brisures de symétrie. La grande dispersion des valeurs de  $\beta$  pour l'échantillon (2) est peut-être la signature d'une dispersion dans la forme des boîtes quantiques, particulièrement dans le remplissage de nanotrous. Si dans un premier temps, le flux de GaAs tend à migrer vers le fond du nanotrou et former une boîte quantique dans la partie la plus profonde, au cours de la croissance, des effets de bords peuvent apparaître, donnant naissance à des boîtes



quantiques avec une forme asymétrique, en particulier lorsque la forme du nanotrou et ses parois sont irrégulières et non symétriques par rapport à un plan médian (figure 2.1.7). Des formes irrégulières ont déjà été observées précédemment [65, 85, 110].

## 3.6 Conclusion

En nous appuyant sur des études de microphotoluminescence polarisée et une modélisation de l'émission excitonique et du rôle du mélange trous lourds-trous légers, nous avons pu mettre en évidence l'amplitude du paramètre de mélange  $\beta$  associé au couplage entre états  $J_z = \pm 3/2$  et états  $J_z = \mp 1/2$ .

Parmi les six contributions possibles au mélange, trois sont prédites négligeables pour les boîtes considérées (confinement 3D, anisotropie planaire, effet d'alliage).

Pour la première famille étudiée, les boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs, un mélange significatif est attendu, induit par les contraintes en raison de la forte différence de paramètres de maille (7%). Une valeur de  $\beta \simeq 0.12$ , comparable aux études précédentes, a été déterminée et attribuée pour l'essentiel aux contraintes comme récemment discuté par des calculs atomistiques [86].

La seconde famille, plus récente, est obtenue à partir de nanotrous permettant la synthèse de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. L'originalité de ces boîtes quantiques est d'être fabriquées sans contrainte. En s'affranchissant de cette contribution au mélange HH-LH, il devient possible d'estimer l'importance des contributions induites par les brisures de symétrie. Un résultat important de cette thèse a été la mise en évidence d'un coefficient  $\beta$  non négligeable,  $\beta \simeq 0.1 - 0.12$  dans deux échantillons différents.

On peut remarquer que, au premier ordre,  $\beta$  est inversement proportionnel à  $\Delta_{HL}$ . Le confinement plus faible dans GaAs/AlGaAs, par rapport aux boîtes InAs/GaAs, peut donc favoriser des valeurs de  $\beta$  significatives, même en l'absence d'une contribution des contraintes au couplage HH-LH.

Reste alors le couplage induit par des interfaces ou la symétrie de la boîte (associée à l'inéquivalence des directions  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$ ). Ces deux contributions sont attendues comparables [86], et sans doute amplifiées si la croissance de la boîte n'est pas uniforme ou le nanotrou trop irrégulier. Nos travaux ont donc montré l'importance du mélange HH-LH, contrairement à l'idée selon laquelle l'absence de contrainte devait réduire fortement  $\beta$ . Des travaux futurs, couplant images STM, modélisation des boîtes quantiques, calcul des niveaux électroniques et mesures optiques de  $\beta$ , seront à conduire.

Si les brisures de symétrie constituent la dernière (ou principale) contribution au

mélange lourd-léger, leur modélisation et un contrôle fin de la synthèse de boîte GaAs/AlGaAs (déjà plus homogènes que les boîtes InAs) doit ouvrir des perspectives quant à leur utilisation dans le futur (émission de photons indiscernables, qubit de spin pur HH).



## Chapitre 4

# Paramètres magnéto-optiques des boîtes quantiques

## 4.1 Introduction

Les excitons confinés dans les boîtes quantiques sont formés après la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. L'électron et le trou (lourd) photocréés dans un tel exciton ont des spins (ou moments cinétiques) de directions opposées. Cet exciton est optiquement actif (ou "brillant") et a un spin total  $|\pm 1\rangle$ . Lors de la recombinaison, un photon polarisé circulairement  $\sigma^\pm$  est émis. Des processus de relaxation non-radiative peuvent former des excitons avec des spins  $|\pm 2\rangle$ ; les spins de l'électron et du trou sont alors parallèles. Cet exciton s'appelle un exciton "noir". Il se trouve à plus basse énergie que l'exciton brillant et a un temps de vie plus long [111] -  $\sim 1\mu s$  pour les états noirs dans les boîtes InAs/GaAs, comparé à  $\sim 600ps$  pour les états brillants.

Les états noirs ne peuvent pas être atteints par une excitation simple et résonante à un photon. En 2009, une méthode permettant d'accéder aux états noirs de manière bien contrôlée a été proposée [112]. Poem et al. ont créé un état métastable de biexciton ("triplet") - deux électrons avec les spins opposés et deux trous lourds avec les spins de la même orientation. Cette configuration existe si un trou est dans l'état fondamental et le second trou est dans un état excité - dans ce cas le principe de Pauli interdit la relaxation de ce trou. Le spin total de cet état biexcitonique  $XX_{T\pm 3}^0$  (T signifie "triplet") est alors égal à  $\pm 3$ . Après un processus de relaxation radiative - le trou dans l'état fondamental recombine avec un électron en émettant un photon polarisé  $\sigma^\pm$  - le trou restant dans un état excité n'est plus bloqué et peut relaxer vers l'état fondamental. Pendant cette transition, il conserve son spin initial, et le résultat est un exciton avec un spin  $\pm 2$  formé par un trou lourd et un électron. Poem et al. utilisent l'excitation non-résonante pour préparer un exciton noir, des excitons noirs se formant de manière aléatoire. Un meilleur contrôle sur la génération des excitons noirs peut être obtenu en utilisant l'excitation résonante avec des polarisations adaptées. Pour "lire" un exciton noir, une charge est injectée dans la boîte quantique et crée ainsi un exciton chargé  $X^\pm$ , optiquement actif, dont l'émission polarisée permet de connaître l'état noir initial.

Un autre moyen d'accéder à ces états optiquement est d'introduire du mélange entre les états noirs et brillants avec un champ magnétique. Le principe de cette approche est décrit, par exemple, dans les références [39, 40, 42, 113, 114], et est aussi donné dans les paragraphes suivants.

Les états noirs avec leur temps de cohérence très long (par rapport aux valeurs observées pour les états brillants), peuvent être de bons candidats comme qubits. Les boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous, objets d'étude de cette thèse, sont relativement peu étudiées, car plus récentes que les boîtes InAs/GaAs, et

toute information sur leurs propriétés magnétooptiques est importante.

## 4.2 Effet de champ magnétique. Effet Zeeman

### 4.2.1 Convention des signes

Dans la littérature, il existe différentes conventions sur les signes des facteurs  $g$ . La détermination des valeurs des facteurs  $g$  dépend alors de l'expression de départ de l'hamiltonien Zeeman. Une des conventions est celle qui est utilisée par Van Kesteren et Bayer [38, 40, 115]. La forme générale de l'hamiltonien d'un exciton est la somme suivante:

$$H_{ex} = H_e + H_h + H_{e-h} \quad (4.2.1)$$

où  $H_e$  et  $H_h$  décrivent le splitting Zeeman pour les électrons et les trous et  $H_{e-h}$  décrit le couplage entre les spins des électrons et des trous dans les excitons. Dans cette convention, pour un électron avec un spin  $S_e$  et un trou avec un spin  $J_h$ , nous avons:

$$\begin{aligned} H_e &= \mu_B g_e \sum_{i=x,y,z} S_{e,i} B_i \\ H_h &= -2\mu_B \sum_{i=x,y,z} (\kappa J_{h,i} + q J_{h,i}^3) B_i \\ H_{e-h} &= - \sum_{i=x,y,z} (a J_{h,i} S_{e,i} + b J_{h,i}^3 S_{e,i}) \end{aligned} \quad (4.2.2)$$

où  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr ( $\mu_B > 0$ ) et  $q, \kappa$  sont des paramètres associés aux bandes de valence de l'hamiltonien de Luttinger-Kohn ( $\kappa \gg q$ ). L'hamiltonien Zeeman s'écrit alors:

$$H_{Zeeman}(B) = \mu_B \sum_{i=x,y,z} (+g_{e,i} S_{e,i} - 2\kappa J_{h,i} - 2q J_{h,i}^3) B_i \quad (4.2.3)$$

Une deuxième convention est donnée dans la référence [116]. L'expression 4.2.3 s'écrit alors comme

$$H_{Zeeman}(B) = \frac{1}{2} \mu_B [g_{e\parallel} \sigma_z B_z + g_{e\perp} (\sigma_{\perp} \cdot B_{\perp})] + g_0 \mu_B \left[ \kappa (J \cdot B) + q \sum_{i=x,y,z} J_i^3 B_i \right] \quad (4.2.4)$$

La différence de signes dans les différentes expressions de l'hamiltonien Zeeman donne une différence de signes des facteurs de Landé. Certains résultats sur les facteurs de Landé de l'électron dans la littérature peuvent ainsi être différents en signe.

L'axe  $z$  est suivant la direction de croissance et les axes  $x$  et  $y$  sont dans le plan des boîtes. Nous allons nous intéresser aux deux configurations de champ magnétique: quand

le champ est orienté perpendiculairement à l'échantillon (donc  $B \parallel z$ ) - la configuration est dite Faraday, et quand le champ est orienté dans le plan des boîtes suivant un des axes cristallins,  $x$  ou  $y$  ( $B \parallel x$  ou  $B \parallel y$ ) - la configuration est dite Voigt.

#### 4.2.2 Configuration Faraday

Considérons tout d'abord la configuration en champ  $B \parallel z$ . Pour simplifier l'expression de l'hamiltonien, rappelons-nous que nous ne considérons que les trous lourds, donc  $J_h = \pm 3/2$  et alors  $J_{h,z}^2 = 9/4$ . En convention [40]:

$$H_{Zeeman}^F(B) = \mu_B(g_{e,z}S_{e,z} - \frac{g_{h,z}}{3}J_{h,z})B_z \quad (4.2.5)$$

et en convention [116]

$$H_{Zeeman}^F(B) = \mu_B(g_{e,z}S_{e,z} + \frac{g_{h,z}}{3}J_{h,z})B_z \quad (4.2.6)$$

$g_{h,z}$  est le facteur  $g$  effectif du trou dont la relation avec les paramètres Luttinger-Kohn est  $g_{h,z} = 6\kappa_z + 13.5q_z$  en convention [116]. Dorénavant, nous allons utiliser la convention [116] et l'expression 4.2.6. Dans la base  $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$

$$H_{Zeeman}^F = \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} -g_{e,z} + g_{h,z} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & g_{e,z} - g_{h,z} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & g_{e,z} + g_{h,z} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -g_{e,z} - g_{h,z} \end{pmatrix} \quad (4.2.7)$$

Cette matrice a une forme diagonale en raison de la symétrie de rotation du système. L'hamiltonien total est la somme de  $H_{Zeeman}^F$  et  $H_{exchange}$  1.4.8. Pour la boîte de symétrie  $D_{2d}$ , les états propres sont

énergie	état propre
$+\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\beta_1$	$ +1\rangle$
$+\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\beta_1$	$ -1\rangle$
$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\sqrt{\delta_2^2 + \beta_2^2}$	$N_3[ +2\rangle + \left(-\frac{\beta_2}{\delta_2} + \sqrt{1 + \frac{\beta_2^2}{\delta_2^2}}\right) -2\rangle]$
$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\sqrt{\delta_2^2 + \beta_2^2}$	$N_4[ +2\rangle + \left(-\frac{\beta_2}{\delta_2} - \sqrt{1 + \frac{\beta_2^2}{\delta_2^2}}\right) -2\rangle]$

Table 4.1: Etats propres pour les boîtes avec la symétrie  $D_{2d}$  en champ Faraday

Ici deux paramètres  $\beta_1 = \mu_B(-g_{e,z} + g_{h,z})B_z$  et  $\beta_2 = \mu_B(g_{e,z} + g_{h,z})B_z$  ont été introduits. Les états propres pour les boîtes à symétrie  $< D_{2d}$  en champ Faraday sont:

énergie	état propre
$+\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + \beta_1^2}$	$N_3[ +1\rangle + \left(-\frac{\beta_1}{\delta_1} + \sqrt{1 + \frac{\beta_1^2}{\delta_1^2}}\right) -1\rangle]$
$+\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + \beta_1^2}$	$N_3[ +1\rangle + \left(-\frac{\beta_1}{\delta_1} - \sqrt{1 + \frac{\beta_1^2}{\delta_1^2}}\right) -1\rangle]$
$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\sqrt{\delta_2^2 + \beta_2^2}$	$N_3[ +2\rangle + \left(-\frac{\beta_2}{\delta_2} + \sqrt{1 + \frac{\beta_2^2}{\delta_2^2}}\right) -2\rangle]$
$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\sqrt{\delta_2^2 + \beta_2^2}$	$N_4[ +2\rangle + \left(-\frac{\beta_2}{\delta_2} - \sqrt{1 + \frac{\beta_2^2}{\delta_2^2}}\right) -2\rangle]$

Table 4.2: Etats propres pour les boîtes avec la symétrie  $< D_{2d}$  en champ Faraday

La représentation graphique des états en champ Faraday est montrée sur l'image 4.2.1. On voit que pour les champs faibles, l'écart en énergie entre les états change non-

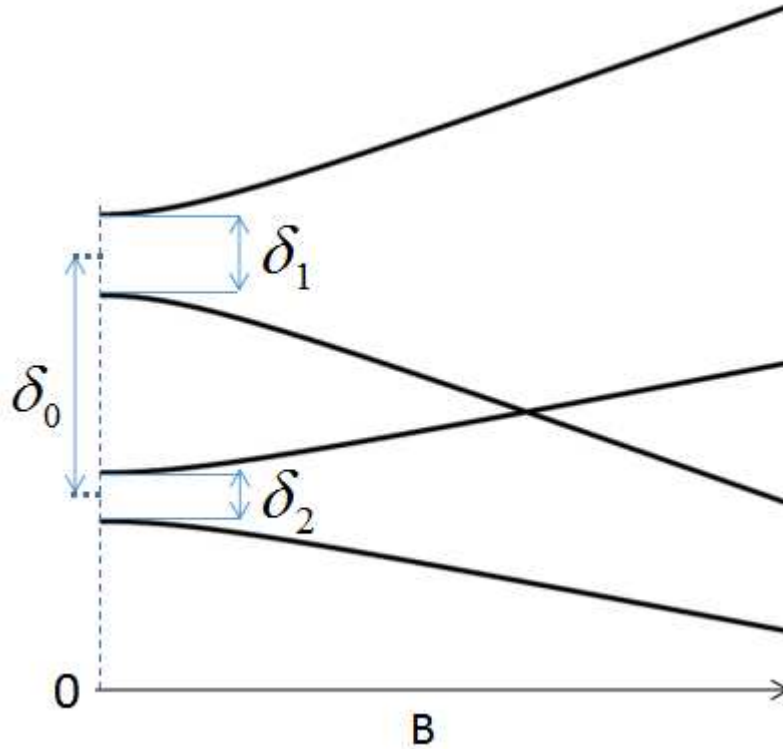


Figure 4.2.1: Structure fine de l'exciton sans champ et sous champ Faraday.

linéairement (quadratiquement); pour les champs plus forts, quand l'effet Zeeman devient grand par rapport à l'énergie d'échange, le comportement devient linéaire. Nous voyons aussi qu'une branche noire croise une branche brillante à un certain champ.



## 4.2.3 Configuration Voigt

Si le champ est orienté dans le plan x-y (perpendiculaire à l'axe de croissance z), la matrice va changer. Si on néglige les termes cubiques (q est petit par rapport à  $\kappa$  pour les boîtes de haute symétrie), la matrice pour l'hamiltonien correspondant est

$$H_{Zeeman,x}^V = \frac{\mu_B B_x}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_{e,x} & g_{h,x} \\ 0 & 0 & g_{h,x} & g_{e,x} \\ g_{e,x} & g_{h,x} & 0 & 0 \\ g_{h,x} & g_{e,x} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.2.8)$$

La matrice de l'hamiltonien pour le champ Voigt a des éléments hors diagonaux. Le champ brise la symétrie de rotation, ce qui cause le mélange des états brillants et des états noirs. Une conséquence est l'apparition des états noirs dans les spectres de luminescence. Plus précisément, la précession des spins des électrons couple les excitons +1 et -1 avec les excitons +2 et -2, respectivement, et la précession des spins des trous couple les excitons +1 et -1, avec les excitons et -2 et +2, respectivement. Les énergies et états propres en champ Voigt, pour un champ transverse selon Ox, sont donnés dans le tableau suivant:

$\vec{B} \parallel \vec{e}_x, < D_{2d}$	
énergie	état propre
$+\frac{1}{4}[(\delta_1 + \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} + g_{h,x})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_1[( +1\rangle +  -1\rangle) + \alpha_1( +2\rangle +  -2\rangle)]$
$+\frac{1}{4}[-(\delta_1 + \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} - g_{h,x})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_2[( +1\rangle -  -1\rangle) + \alpha_2( +2\rangle -  -2\rangle)]$
$-\frac{1}{4}[-(\delta_1 + \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} + g_{h,x})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_3[( +2\rangle +  -2\rangle) + \alpha_3( +1\rangle +  -1\rangle)]$
$-\frac{1}{4}[(\delta_1 + \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} - g_{h,x})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_4[( +2\rangle -  -2\rangle) + \alpha_4( +1\rangle -  -1\rangle)]$

Table 4.3: Etats propres pour les boîtes avec la symétrie  $< D_{2d}$  en champ Voigt

Ici  $\alpha_i, i = 1, \dots, 4$  sont des paramètres de mélange des états introduits par le champ magnétique. Ils deviennent zéro en l'absence de champ. La matrice pour le champ orienté suivant l'axe Y s'écrit:

$$H_{Zeeman,y}^V = \frac{i\mu_B B_y}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_{e,y} & -g_{h,y} \\ 0 & 0 & g_{h,y} & -g_{e,y} \\ -g_{e,y} & -g_{h,y} & 0 & 0 \\ +g_{h,y} & g_{e,y} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.2.9)$$

Les énergies et états correspondants pour le champ aligné suivant l'axe Y sont donnés dans le tableau suivant:

$\vec{B} \parallel \vec{e}_y, < D_{2d}$	
énergie	état propre
$+\frac{1}{4}[(\delta_1 - \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_{e,y} + g_{h,y})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_1[( +1\rangle +  -1\rangle) + i\beta_1( +2\rangle -  -2\rangle)]$
$+\frac{1}{4}[-(\delta_1 - \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_{e,y} - g_{h,y})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_2[( +1\rangle -  -1\rangle) + i\beta_2( +2\rangle +  -2\rangle)]$
$-\frac{1}{4}[(\delta_1 - \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_{e,y} - g_{h,y})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_3[( +2\rangle +  -2\rangle) + i\beta_3( +1\rangle -  -1\rangle)]$
$-\frac{1}{4}[-(\delta_1 - \delta_2) + \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_{e,y} + g_{h,y})^2 \mu_B^2 B^2}]$	$N_4[( +2\rangle -  -2\rangle) + i\beta_4( +1\rangle +  -1\rangle)]$

 Table 4.4: Etats propres pour les boîtes avec la symétrie  $< D_{2d}$  en champ Voigt

Les  $\beta_j, j = 1..4$ , sont des paramètres de mélange. La représentation graphique des états en champ Voigt est donnée sur l'image 4.2.2.

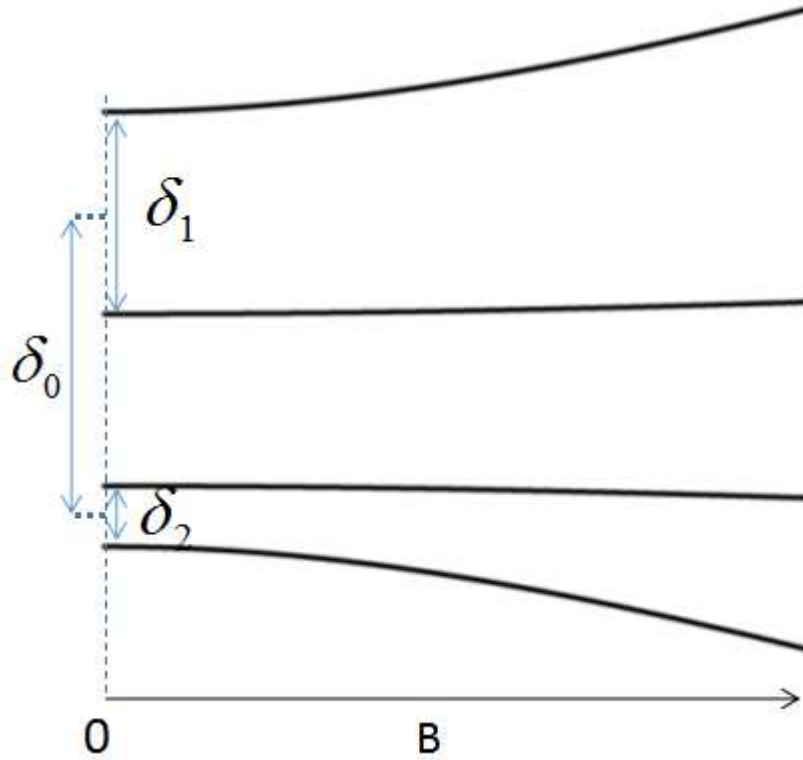


Figure 4.2.2: Structure fine de l'exciton sans champ et sous champ Voigt.

### 4.3 Décalage diamagnétique

Nous avons discuté précédemment de l'effet Zeeman qui lève la dégénérescence des états de spin de l'électron ou du trou. Cet effet est linéaire en champ magnétique, et dépend des facteurs de Landé. Une contribution supplémentaire, indépendante du spin de l'exciton, est quadratique. Ce shift ou décalage diamagnétique augmente l'énergie des excitons et

dépend de l'extension spatiale, donc du confinement, de l'exciton. Ce paramètre peut donc nous renseigner sur la taille du potentiel de confinement. En effet, une réduction de la taille de la boîte quantique et une augmentation de l'interaction Coulombienne vont diminuer fortement le décalage diamagnétique.

Walck et Reinecke [117] ont déterminé l'expression du décalage diamagnétique, noté  $\kappa$ , dans une nanostructure semiconductrice. Sans donner la dérivation complète, on peut rappeler que le décalage diamagnétique est donné par:

$$\begin{aligned} \kappa = \min_{\lambda_1, \lambda_2, \lambda_e, \lambda_h} \frac{e^2}{8c^2} \left\{ \left[ \frac{(1 - \lambda_e)^2}{m_{ey}} + \frac{\lambda_1^2}{m_{hy}} \right] \langle x_e^2 \rangle + \left[ \frac{(1 + \lambda_e)^2}{m_{ex}} + \frac{\lambda_2^2}{m_{hx}} \right] \langle y_e^2 \rangle - \right. \\ \left. - 2 \left[ \frac{(1 - \lambda_e)\lambda_2}{m_{ey}} + \frac{(1 - \lambda_h)\lambda_1}{m_{hy}} \right] \langle x_e x_h \rangle - 2 \left[ \frac{(1 + \lambda_e)\lambda_1}{m_{ex}} + \frac{(1 + \lambda_h)\lambda_2}{m_{hx}} \right] \langle y_e y_h \rangle + \right. \\ \left. + \left[ \frac{\lambda_2^2}{m_{ey}} + \frac{(1 - \lambda_h)^2}{m_{hy}} \right] \langle x_h^2 \rangle + \left[ \frac{\lambda_1^2}{m_{ex}} + \frac{(1 + \lambda_h)^2}{m_{hx}} \right] \langle y_h^2 \rangle \right\} \quad (4.3.1) \end{aligned}$$

où les paramètres  $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_e, \lambda_h$  sont les solutions du système d'équations:

$$\begin{bmatrix} \frac{\langle x_e^2 \rangle}{m_{hy}} + \frac{\langle y_h^2 \rangle}{m_{ex}} & 0 & -\frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{ex}} & \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{hy}} \\ 0 & \frac{\langle x_h^2 \rangle}{m_{ey}} + \frac{\langle y_e^2 \rangle}{m_{hx}} & \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{ey}} & -\frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{hx}} \\ -\frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{ex}} & \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{ey}} & \frac{\langle x_e^2 \rangle}{m_{ey}} + \frac{\langle y_e^2 \rangle}{m_{ex}} & 0 \\ \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{hy}} & -\frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{hx}} & 0 & \frac{\langle x_h^2 \rangle}{m_{hy}} + \frac{\langle y_h^2 \rangle}{m_{hx}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1 \\ \lambda_2 \\ \lambda_e \\ \lambda_h \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{hy}} + \frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{ex}} \\ \frac{\langle x_e x_h \rangle}{m_{ey}} + \frac{\langle y_e y_h \rangle}{m_{hx}} \\ \frac{\langle x_e^2 \rangle}{m_{ey}} - \frac{\langle y_e^2 \rangle}{m_{ex}} \\ \frac{\langle x_h^2 \rangle}{m_{hy}} - \frac{\langle y_h^2 \rangle}{m_{hx}} \end{bmatrix} \quad (4.3.2)$$

Afin de simplifier ces expressions, nous allons faire l'hypothèse que les fonctions d'onde de l'électron et du trou sont centrées au même endroit. Cette hypothèse est valide dans le cas où la boîte a une symétrie  $C_{2v}$  (les boîtes dans les nanotrous peuvent avoir une symétrie réduite comme mentionné dans le chapitre 3). Si nous posons le centre des coordonnées au centre de symétrie de la boîte, nous avons

$$\langle x_e x_h \rangle = \langle y_e y_h \rangle = 0 \quad (4.3.3)$$

Dans ces équations, l'axe z est toujours choisi selon la direction du champ magnétique. En configuration Faraday, z est l'axe de croissance; en configuration Voigt, il est selon un des axes cristallins dans le plan. Dans (4.3.2), les termes hors diagonaux vont disparaître

et les deux premières équations conduisent aux solutions  $\lambda_1 = \lambda_2 = 0$ . La troisième et la quatrième équations donnent alors:

$$\lambda_e = \frac{\frac{\langle x_e^2 \rangle}{m_{ey}} - \frac{\langle y_e^2 \rangle}{m_{ex}}}{\frac{\langle x_e^2 \rangle}{m_{ey}} + \frac{\langle y_e^2 \rangle}{m_{ex}}}, \quad \lambda_h = \frac{\frac{\langle x_h^2 \rangle}{m_{hy}} - \frac{\langle y_h^2 \rangle}{m_{hx}}}{\frac{\langle x_h^2 \rangle}{m_{hy}} + \frac{\langle y_h^2 \rangle}{m_{hx}}} \quad (4.3.4)$$

Il est ensuite possible d'utiliser ces formules dans l'équation 4.3.1 pour exprimer le décalage diamagnétique  $\kappa$ . Nous allons essayer d'en déduire des expressions simplifiées.

Les images AFM (chapitre 2) montrent une anisotropie latérale. Une étude du décalage diamagnétique pour les deux configurations de champ Voigt (orienté selon  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$ ) pourrait permettre d'analyser les effets de cette anisotropie. Cependant, nos travaux ne nous ont pas permis de le faire.

Afin de réaliser une étude semi-quantitative, nous simplifierons les formules en considérant des boîtes quantiques isotropes en xOy ( $\langle x_i^2 \rangle = \langle y_i^2 \rangle = \frac{\langle \rho_i^2 \rangle}{2}$ ,  $i=e,h$ ). A partir de nanotrous isotropes (diamètre 60 nm et profondeur 15 nm), Zaineb Trabelsi [communication privée - article en cours de soumission] a montré que pour des épaisseurs variables (2 à 10 nm), l'énergie de l'exciton varie de 1.6 à 1.85 eV et les extensions spatiales de l'électron et du trou sont très proches. Nous ferons donc l'hypothèse:  $\langle \rho_e^2 \rangle = \langle \rho_h^2 \rangle = \langle \rho^2 \rangle$ ;  $\langle z_e^2 \rangle = \langle z_h^2 \rangle = \langle z^2 \rangle$ .

Connaissant la masse effective de l'électron ( $m_e = 0.067$ ) et du trou lourd ( $m_h^x = m_y^x = 0.111$  et  $m_z^x = 0.35$ ), et définissant un paramètre de forme  $\lambda = \sqrt{\frac{\langle \rho^2 \rangle}{\langle z^2 \rangle}}$ , on peut écrire:

$$\begin{aligned} \kappa^z &= \frac{e^2}{8} \left( \frac{1}{m_e^x} + \frac{1}{m_h^x} \right) \langle \rho^2 \rangle \\ \kappa^x &= \frac{e^2}{2} \left( \frac{1}{m_e^z(2 + \lambda^2)} + \frac{1}{2m_h^z + \lambda^2 m_h^x} \right) \lambda^2 \langle z^2 \rangle \end{aligned} \quad (4.3.5)$$

Nous reviendrons sur ces expressions plus tard.

## 4.4 Résultats expérimentaux: boîtes InAs/GaAs

Les études des facteurs de Landé en champ magnétique ont été effectuées sur le même échantillon que dans le chapitre 3, en utilisant la même configuration expérimentale. Les

boîtes avec une densité  $\approx 1$  boîte/ $\mu\text{m}^2$  émettent autour de 915 nm.

#### 4.4.1 Spectres de photoluminescence en champ magnétique (configuration Voigt), $g_{e,x}$ et $g_{h,x}$

Pour les boîtes quantiques InAs/GaAs, nous avons fait des mesures avec un champ magnétique en configuration Voigt. Dans cette configuration, nous pouvons faire apparaître la luminescence des états noirs et ainsi faire une comparaison avec les études précédentes. Une série de mesures consiste en l'acquisition successive de spectres de photoluminescence de 0 T à 7 T avec un pas de 0.25 T. L'intensité totale est mesurée, sans polariseur à l'analyse. A partir de ces séries de spectres, il est possible d'obtenir des images en code couleur, par interpolation linéaire entre les valeurs discrètes du champ magnétique. Un exemple de spectre ainsi obtenu est montré sur la figure 4.4.1.

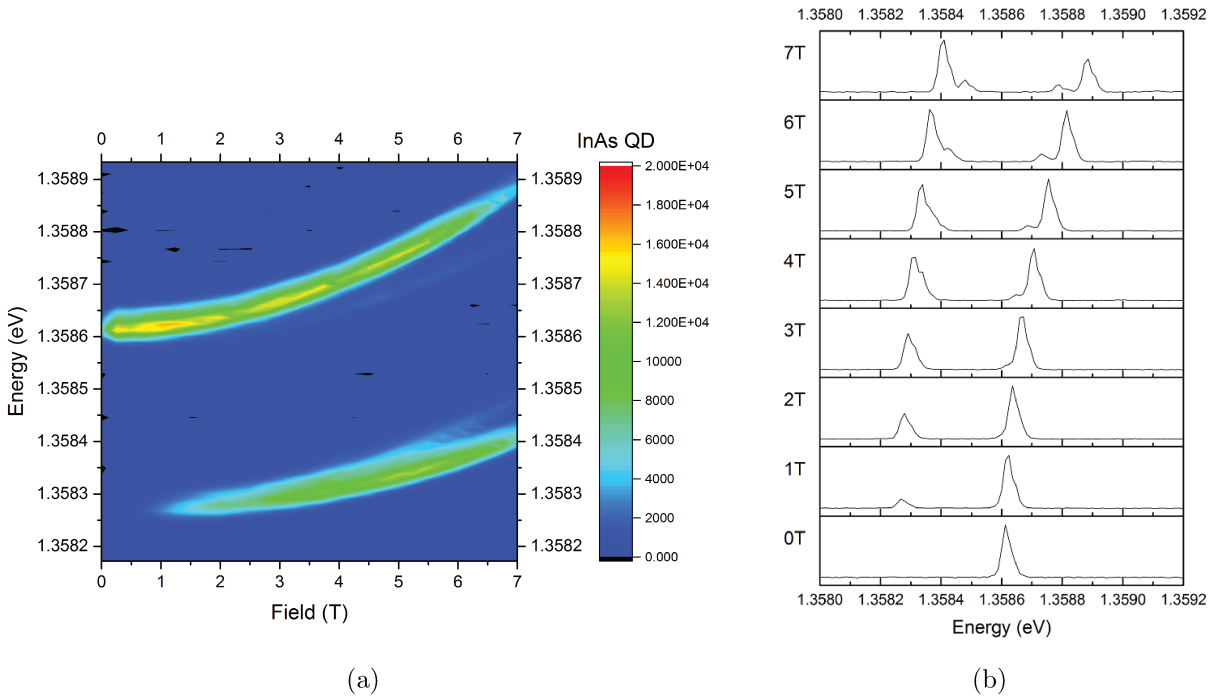


Figure 4.4.1: Série en champ magnétique d'une boîte quantique InAs: (a) spectre en code couleur (b) spectres 1D pour des valeurs de champ de 0 à 7 T avec un pas d'1 T. Excitation à 638 nm avec la puissance 60  $\mu\text{W}$ .

Sur ce spectre, deux états brillants sont visibles au voisinage de 1.35862 eV, à 0 T.

Nous voyons que le splitting Zeeman augmente avec le champ. A 7 T, le splitting Zeeman des états brillants atteint ainsi une valeur  $\approx 100 \mu\text{eV}$ .

Deux branches associées aux états noirs apparaissent vers 0.5 – 1T. Elles sont polarisées inversement par rapport aux branches brillantes - la branche noire à plus haute énergie a la même polarisation que la branche brillante à plus basse énergie. L'intensité des branches noires augmente jusqu'à 3T.

(La différence en intensité entre les deux branches brillantes et noires, respectivement, est la conséquence d'une réponse anisotrope du spectromètre aux polarisations linéaires orthogonales. Un petit décalage (de l'ordre de quelques degrés) est induit par le passage dans une fibre optique. Ceci contribue dans une moindre mesure aux variations d'intensités relatives enregistrées pour les raies, avec des polarisations différentes.)

A partir de 3 T, nous pouvons distinguer la structure fine des branches associées aux états noirs. A 3 T, nous voyons un épaulement sur le pic correspondant aux branches noires, et à 6-7 T deux raies sont bien discernables.

Pour chaque acquisition, le spectre est analysé en approximant les pics à l'aide de fonctions lorentziennes. Nous utilisons ensuite les positions des centres des pics pour faire des ajustements avec les formules 4.3 et en déduire les paramètres physiques.

Le tableau récapitulatif des résultats est:

Boîte	$E_0$ (eV)	$\delta_0$ ( $\mu eV$ )	$\delta_1$ ( $\mu eV$ )	$\delta_2$ ( $\mu eV$ )	$g_e$	$g_h$	$\kappa_x$ , ( $\mu eV/T^2$ )
1	1.36272	312	53	-15	0.49	0.65	4.8
2	1.36500	310	26	-8	0.49	0.73	4.0
3	1.36610	275	100	-9	0.43	0.96	4.8
4	1.36679	285	21	-12	0.45	0.71	4.1
5	1.36424	301	18	-2	0.43	0.54	4.0
6	1.36406	275	45	-9	0.51	0.96	4.6
7	1.35845	344	22	-7	0.36	0.67	3.9
8	1.36363	280	22	-6	0.41	0.65	4.3
9	1.36042	312	28	-1	0.43	0.63	4.4
10	1.36117	301	68	-10	0.51	0.86	4.8

Table 4.5: Tableau récapitulatif des résultats sur 10 boîtes quantiques InAs/GaAs en configuration de champ Voigt.

La valeur  $\delta_0$  est d'environ  $300\mu eV$ , proche des résultats obtenus précédemment par d'autres groupes [40, 118]. Nous trouvons des valeurs de  $\delta_1$  entre 18 et  $100\mu eV$  avec des ajustements de positions de pics pour les résultats à 0T, qui sont aussi en accord avec des résultats précédents [40]. Les ajustements avec des expressions 4.3 donnent les valeurs de  $\delta_2$  entre -15 et  $0\mu eV$ .

Le facteur  $g_h$  du trou varie entre 0.54 et 0.96, et le facteur  $g_e$  de l'électron varie entre 0.36 et 0.51, des valeurs comparables à celles rapportées précédemment [119, 120].

Notre expérience de micro-magnéto-photoluminescence a donc permis d'étudier finement des boîtes quantiques uniques et leur structure fine, et de caractériser des boîtes quantiques InAs/GaAs obtenues par croissance Stranski-Krastanov. Sur nos structures, nous avons trouvé des propriétés proches de celles obtenues auparavant.

## 4.5 Résultats expérimentaux: boîtes GaAs/AlGaAs

Nous allons maintenant nous tourner vers une nouvelle famille de boîtes quantiques, sans contrainte, et les caractériser dans deux configurations de champ magnétique.

### 4.5.1 Spectres de photoluminescence sous champ magnétique - Faraday

L'échantillon étudié est le même que celui décrit dans le chapitre 3. Les boîtes émettent vers 750 nm (1,65 eV) et la largeur spectrale de l'ensemble est 9 nm (20 meV). La densité des boîtes est d'environ 1 boîte/ $\mu\text{m}^2$ . Le faisceau laser, focalisé et formant un spot de 3-4  $\mu\text{m}$  de diamètre, peut exciter  $\sim 10$  boîtes en même temps. La puissance d'excitation mesurée devant la fenêtre d'entrée du cryostat est 100 nW.

Nous avons fait des spectres de photoluminescence sous champ magnétique de 0 à 7 T avec un pas de 0.25 T. La figure 4.5.1 montre un exemple de spectres obtenus. La valeur enregistrée est l'intensité totale de luminescence (sans polariseur à la détection).

Ici, nous voyons le signal de deux (ou d'encore plus, si on compte les traces plus faibles) boîtes quantiques avec des énergies assez proches - nous observons toujours plusieurs boîtes en raison de la taille du spot et de la densité des boîtes dans cet échantillon. Sur la figure 4.5.1, nous voyons deux branches brillantes pour chaque boîte. Nous n'observons pas les états noirs avec les paramètres d'enregistrement choisis. Dans la configuration Faraday, la luminescence des états noirs peut être observée pour des valeurs de champ associées au croisement d'un état noir avec un état brillant [40] (figure 4.2.1). L'absence de ce comportement dans nos résultats indique que, soit ce croisement apparaît à plus fort champ, soit les pas d'acquisition ne sont pas suffisamment fins. Les états noirs en configuration de champ Faraday ont aussi été observés dans le régime d'excitation à basse puissance pour les boîtes dans les nanotrous GaAs/AlGaAs [121]. Nous n'avons pas réussi à voir les états noirs utilisant la puissance d'excitation ( $\approx 40\text{nW}$ ). Il est possible de déterminer différents paramètres, dont le facteur de Landé de l'exciton brillant,  $g_z = g_h - g_e$ . Les excitons noirs n'étant pas visibles, il n'est pas possible de déterminer séparément les facteurs de Landé des deux particules (contrairement au cas de la configuration Voigt).

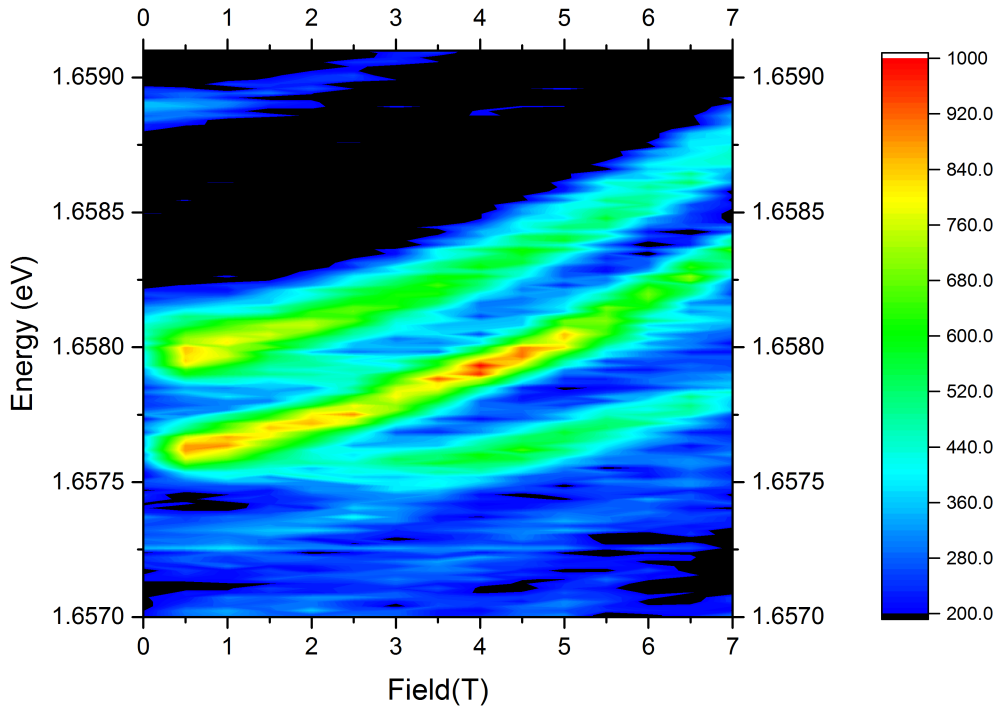


Figure 4.5.1: Spectre de photoluminescence sous champ en configuration Faraday avec des pas de 0.25 T. L'échantillon est celui vu au chapitre 3. Excitation à 638 nm avec la puissance 60  $\mu$ W.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la statistique des paramètres des boîtes. A nouveau, pour chaque acquisition, nous faisons un ajustement des positions des pics avec des fonctions lorentziennes. Grâce aux expressions des énergies propres (table 4.1), il est possible d'ajuster les valeurs  $g_z$  de l'exciton, la valeur du décalage diamagnétique  $\kappa_z$  et le splitting  $\delta_1$ . Les résultats sont présentés dans le tableau récapitulatif suivant:



Boîte	E (eV)	$\delta_1$ ( $\mu\text{eV}$ )	$g_z$	$\kappa_z$ , ( $\mu\text{eV}/\text{T}^2$ )
1	1.66174	70*	1.57	9.1
2	1.66028	70*	1.5	7.4
3	1.65982	45	1.5	8.9
4	1.65924	-	1.31	10.1
5	1.65889	70*	1.35	9.7
6	1.65803	100*	1.69	9.7
7	1.65762	70*	1.63	9.9
8	1.65618	80*	1.57	9.9
9	1.65504	57	1.38	10.2
10	1.65326	-	1.5	9.7
11	1.65237	60	1.63	9.7
12	1.64997	100*	1.19	7.4
13	1.64928	65	1.66	11.1
14	1.64926	-	1.66	9.0
15	1.65976	69	1.38	9.7
16	1.65901	69	1.31	11.2
17	1.65851	65	1.54	10.2

Table 4.6: Tableau récapitulatif des résultats sur 17 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs en configuration de champ Faraday.

Nous allons comparer nos résultats avec d'autres études sur les facteurs  $g$  et les valeurs de décalage diamagnétique. La première comparaison sera avec un échantillon obtenu avec la même méthode de croissance que la nôtre, mais avec des paramètres différents (référence [121]). Le deuxième groupe d'échantillons est composé de boîtes obtenues par l'épitaxie droplet GaAs/AlGaAs [122]. Nous avons également ajouté à la comparaison des boîtes formées par des fluctuations d'interfaces dans un puits quantique GaAs/AlGaAs [17, 18]. Ces types de boîtes sont formés naturellement pendant la croissance de ces puits quantiques. Les boîtes de fluctuations d'interface ont typiquement une épaisseur de quelques monocouches atomiques, leur potentiel de confinement est relativement faible, mais suffisant pour que un ou deux états excités y soient confinés [123].

Le dernier groupe d'échantillons dans cette étude comparative sera constitué de boîtes InAs/GaAs auto-assemblées [40, 119, 124, 125].

## Résultats sur les facteurs de Landé

Avant tout, intéressons-nous aux valeurs des facteurs  $g$  dans les semiconducteurs massifs. Dans les semiconducteurs massifs, l'interaction spin-orbite forte peut causer des facteurs  $g$  négatifs forts. Le facteur  $g$  de l'électron dans InAs massif est -14.8 (le facteur  $g$  de l'électron libre étant 2); pour GaAs massif cette valeur est -0.44 et pour AlAs  $g_e = 2$ ;

le confinement peut changer ce facteur. Cette valeur de  $g$  peut varier selon la forme et la taille de la boîte quantique, ainsi que la composition, ce qui peut nous donner des indications quant à la nature de la boîte quantique.

Trois types de boîtes quantiques GaAs/AlGaAs sont considérés dans cette discussion. Pour les boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par la méthode de remplissage des nanotrous, un facteur  $g$  de l'électron de  $-0.1$  a été observé [121]. Cette valeur est petite et il semble possible de contrôler le signe de  $g_e$  avec les paramètres de croissance. La possibilité d'obtenir  $g_e$  proche de 0 est un résultat particulièrement important parce que il ouvre des possibilités de manipulations de spins uniques.<sup>1</sup>

Pour ce qui concerne le facteur de Landé longitudinal de l'exciton, la table 4.7 montre les valeurs obtenues dans différentes boîtes quantiques.

Echantillon	$g_{ex,z}$
Nanotrous (nous)	1.3-1.7
Nanotrous 2(réf [121])	0.6
Droplet (réf [122])	0.8-1.9
Fluctuations (réf [17,18])	1.3-2.1
InAs/GaAs (réf [40])	3

Table 4.7: Comparaison des valeurs de  $g_z$  de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs.

Les valeurs du facteur  $g_z$  de l'exciton que nous avons déterminées sont dans l'intervalle compris entre 1.3 et 1.7, ce qui est plus grand que les valeurs observées par A.Ulhaq et al. [121]. Pour ces boîtes, le facteur  $g$  du trou est estimé à  $0.5 \pm 0.1$ , ce qui donne un facteur  $g$  de l'exciton égal à  $0.6 \pm 0.1$ . L'épaisseur nominale de la couche des boîtes est 0.75 nm pour notre échantillon et 3.5nm pour l'échantillon de A.Ulhaq et al. [121], ce qui se traduit par une énergie d'émission au voisinage de 1.65 eV pour nos boîtes, et seulement 1.58 eV pour celles de Ulhaq et al [121]. Un confinement plus fort semble donc conduire à un  $g_z$  plus grand.

Pour les boîtes de type droplet,  $g_z$  varie dans un intervalle assez large, de 0.8 à 1.9, qui recouvre les valeurs que nous avons observées. Là encore, il a été observé que  $g_z$

---

<sup>1</sup>Une méthode possible est d'initialiser et de contrôler un spin unique dans une boîte quantique avec des pulses optiques ultrarapides [126,127]. Cette méthode exploite la différence en énergie des états ayant les projections de spin opposées sous champ magnétique. L'effet Stark optique change l'énergie de transition dans la boîte, pour les transitions conformes aux règles de sélection optiques, ce qui peut être traité comme un champ magnétique effectif [128]. Synchronisée à la précession du spin résident, l'impulsion Stark peut manipuler le spin. Pour des systèmes plus complexes, la réalisation de cette méthode devient compliquée. Une alternative aux pulses optiques ultrarapides pour contrôler le spin dans une boîte quantique est l'utilisation d'un champ électrique local [129–131], qui permet la manipulation du facteur de Landé. En présence d'un champ magnétique constant, il devient possible d'initialiser un état de spin souhaité. Cette approche permet également une modulation à haute fréquence. C'est une méthode prometteuse, car potentiellement plus facile à réaliser au niveau industriel.

augmente lorsque le confinement (et l'énergie d'émission) augmente [122].

Le facteur  $g$  de l'exciton dans les boîtes de fluctuations d'interface a été mesuré dans la gamme 1.3-2.1. Les boîtes de ce type sont formées par des inhomogénéités d'interface qui ont typiquement une épaisseur de l'ordre de la monocouche atomique et un confinement fort suivant l'axe de croissance.

De cette observation, on peut conclure que, en diminuant l'épaisseur, on augmente le confinement suivant l'axe  $z$ , ce qui se traduit par une augmentation de l'énergie d'émission et une augmentation de  $g_z$ , pour les boîtes quantiques formés de GaAs (à base de nanotrous, droplets ou fluctuations d'interface).

### Résultats sur $\delta_1$

Le deuxième paramètre que nous avons pu déterminer dans nos boîtes quantiques est le splitting d'échange  $\delta_1$  qui permet de comprendre la forme de la boîte (sa symétrie).

Echantillon	$\delta_1 (\mu eV)$
Nanotrous (nous)	45-100
Nanotrous 2	12
Droplet	48
Fluctuations	24-55
InAs/GaAs	40-160

Table 4.8: Comparaison des valeurs de  $\delta_1 (\mu eV)$  de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs

Pour des raisons de stabilité expérimentale, les séries de mesures ont été faites en une fois, et l'analyse des pics a été faite ensuite. La méthode utilisée pour séparer deux pics est de mesurer, dans un premier temps, les largeurs des raies à des champs où elles sont séparées. Utilisant cette largeur de raie, un ajustement du spectre est fait à champ nul afin d'extraire  $\delta_1$  du doublet observé. Les ajustements donnent des résultats entre 45 et 100  $\mu eV$ , ce qui indique une anisotropie variable pour les boîtes. De plus, les valeurs maximales (100  $\mu eV$ ) indiquent une anisotropie forte pour certaines boîtes.

Il est intéressant de noter que Ulhaq et al. [121] ont mesuré des valeurs de  $\delta_1$  très petites, ce qui indique une forte symétrie par rapport à nos boîtes. Ceci confirme que cette méthode de croissance doit permettre d'obtenir de telles boîtes de façon récurrente si on atteint un contrôle reproductible des paramètres de croissance. On peut en particulier noter, que pour une croissance SK, sous forte contrainte, la dispersion de  $\delta_1$  est forte avec des valeurs plus élevées.

Les boîtes de type droplets présentent des valeurs de  $\delta_1$  comparables à celles que nous avons obtenues, ce qui indique une symétrie brisée plus fortement que dans les boîtes quantiques de fluctuations d'interfaces qui ont des  $\delta_1$  plus modérés.

### Décalage diamagnétique

Enfin, nous allons comparer les valeurs des  $\kappa_z$ , associées au décalage diamagnétique

Echantillon	$\kappa_z (\mu eV/T^2)$
Nanotrous (nous)	7-11
Nanotrous 2	17-24
Droplet	4-8
Fluctuations	10-25
InAs/GaAs	7-11

Table 4.9: Comparaison de la valeur de  $\kappa_z$  de l'exciton obtenues pour différentes familles de boîtes GaAs.

Le décalage diamagnétique est lié à la taille de la boîte. A partir des valeurs obtenues, nous pouvons donc comparer le confinement et le rayon de l'exciton. Les valeurs que nous avons obtenues pour les boîtes InAs correspondent à des boîtes auto-assemblées de taille  $\sim 15$  nm et de hauteur 2-3 nm.

Dans les boîtes de fluctuations d'interface le confinement latéral est typiquement faible ce qui donne un rayon d'exciton assez grand. Le décalage diamagnétique peut atteindre alors  $25 \mu eV/T^2$ .

Les boîtes obtenues par épitaxie de type droplet sont assez proches en valeurs obtenues, mais les petites valeurs rapportées de  $\kappa_z$  indiquent un confinement plus fort, ce qui correspond à leur taille typiquement plus petite que pour les boîtes dans les nanotrous (40 nm DE contre 60 nm nanotrous)

#### 4.5.2 Spectres de photoluminescence en champ magnétique - Voigt, $g_{e,x}$ et

$g_{h,x}$

Pour la deuxième partie de cette étude, les bobines du cryostat ont été tournées de 90 degrés. Le champ est alors appliqué dans le plan de l'échantillon et perpendiculairement à l'excitation et à la détection (configuration Voigt). Nous allons alors étudier les facteurs  $g$  des électrons et des trous dans le plan. Dans cette configuration, en raison du couplage entre les états noirs et les états brillants, quatre branches sont visibles. Un des spectres enregistrés en configuration Voigt est présenté sur l'image 4.5.2 (a).

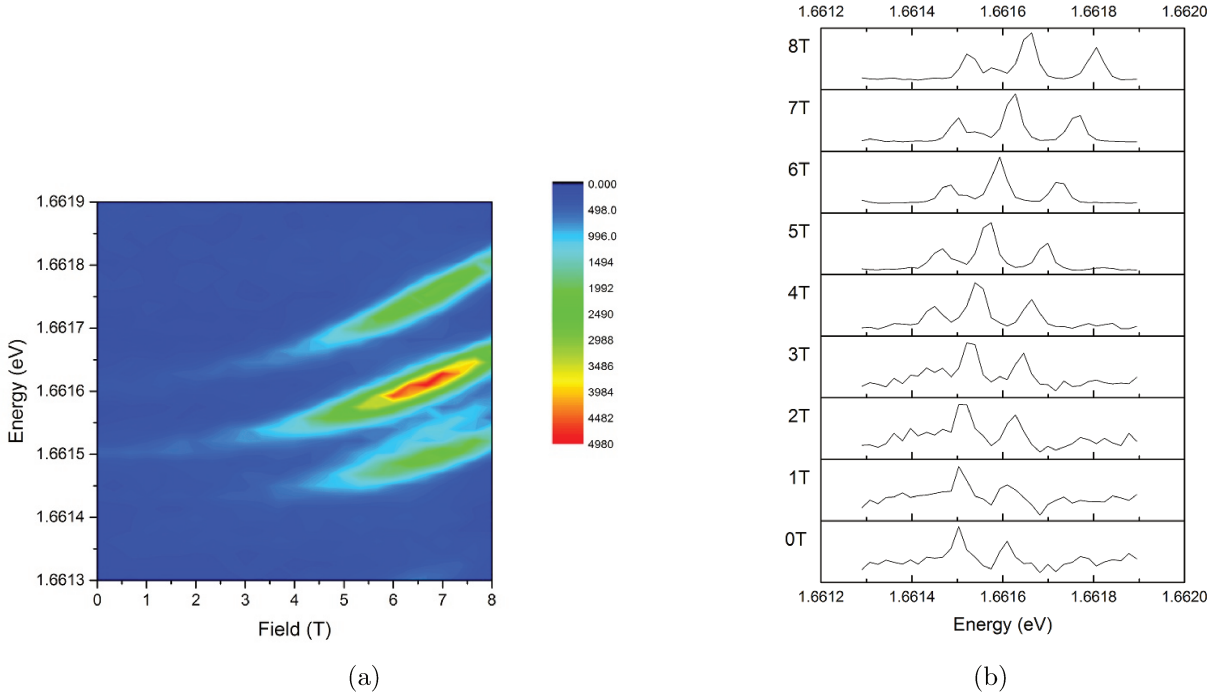


Figure 4.5.2: Série en champ magnétique (configuration Voigt) de la photoluminescence d'une boîte quantique GaAs/AlGaAs (boîte 4 du tableau 4.10 : (a) spectre en code couleur (b) spectres 1D pour des valeurs de champ de 0 à 8 T avec un pas d'1 T. Excitation à 638 nm avec la puissance 60  $\mu W$ .

Sur cette image, les quatre états sont visibles: deux branches brillantes en haut et deux branches noires qui apparaissent à  $\sim 3T$ . Les quatre branches sont bien séparables et nous pouvons ajuster les positions des pics pour trouver des énergies d'émission. Ensuite, grâce aux expressions des énergies propres en champ Voigt, nous pouvons trouver les valeurs  $\delta_0$ ,  $\delta_2$ ,  $g_{e,x}$ ,  $g_{h,x}$  et  $\kappa_x$  - décalage diamagnétique correspondant.  $\delta_1$  peut être mesuré directement à champ nul. La figure 4.5.2 présente des spectres 1D pour cette même boîte. A forts champs (7-8 T) nous pouvons distinguer les deux raies associées aux états noirs.

Nous attribuons le changement des intensités de raies sur une partie de nos spectres de photoluminescence à fort champ, aux petits déplacements des éléments de notre montage expérimental sensibles au champ magnétique. Un déplacement de 1  $\mu m$  est suffisant pour perdre la luminescence d'une boîte qui était au centre du spot laser.

Nous avons mesuré 9 boîtes avec les branches noires bien visibles. Les résultats de ces ajustements sont présentés dans le tableau 4.10. Les boîtes sont différentes de celles dans la partie Faraday. Comme pour le cas du champ Faraday, nous allons aussi faire un lien avec d'autres résultats obtenus pour les paramètres que nous avons trouvés. La configuration de champ Voigt est moins discutée dans la littérature, et nous avons suff-

isamment de données pour faire une comparaison avec un seul groupe de boîtes - boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs qui émettent dans la région  $\sim 1,31$  eV (950 nm) ([40, 119, 120, 131]). Nous allons également ajouter nos résultats sur les boîtes InAs présentés dans la section précédente.

Boîte	$E_0$	$\delta_0(\mu eV)$	$\delta_1(\mu eV)$	$\delta_2(\mu eV)$	$g_e$	$g_h$	$\kappa_x(\mu eV/T^2)$
1	1.65874	138	62	-10	0.14	0.3	2.3
2	1.65583	148	66	-12	0.2	0.25	2.4
3	1.65162	151	88	-25	0.2	0.28	2.5
4	1.66148	144	111	-21	0.21	0.27	2.6
5	1.65811	165	51	-25	0.23	0.2	2.3
6	1.66078	144	51	-17	0.21	0.2	2.2
7	1.6587	141	86	-14	0.19	0.28	2.5
8	1.65747	144	52	-14	0.16	0.28	2.5
9	1.66109	151	58	-6	0.19	0.26	2.3

Table 4.10: Tableau récapitulatif des résultats sur 9 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs en configuration de champ Voigt.

Le paramètre  $\delta_1$ , écart en énergie entre les états brillants à champ nul, est inclus dans un intervalle 50-110  $\mu eV$ , tout à fait comparable à celui observé dans la partie précédente, ce qui s'ajoute à la statistique déjà obtenue dans la partie de ce chapitre qui présente nos résultats en champ Faraday.

Echantillon	$\delta_1(\mu eV)$
GaAs/AlGaAs (nous)	52-111
InAs (nous)	18-110
InAs (littérature) [40, 119, 120, 131]	30-160

Table 4.11: Comparaison des valeurs de  $\delta_1$  obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs

Pour les deux familles de boîtes InAs, les valeurs et dispersions des paramètres  $\delta_1$  sont comparables. On constate également que pour les boîtes GaAs/AlGaAs non contraintes, la dispersion de  $\delta_1$  est plus faible que pour les boîtes InAs. Ceci semble indiquer une certaine homogénéité dans la forme des boîtes GaAs/AlGaAs.

Le deuxième paramètre que nous pouvons déterminer est  $\delta_0$ , l'écart entre l'énergie des branches brillantes et des branches noires.

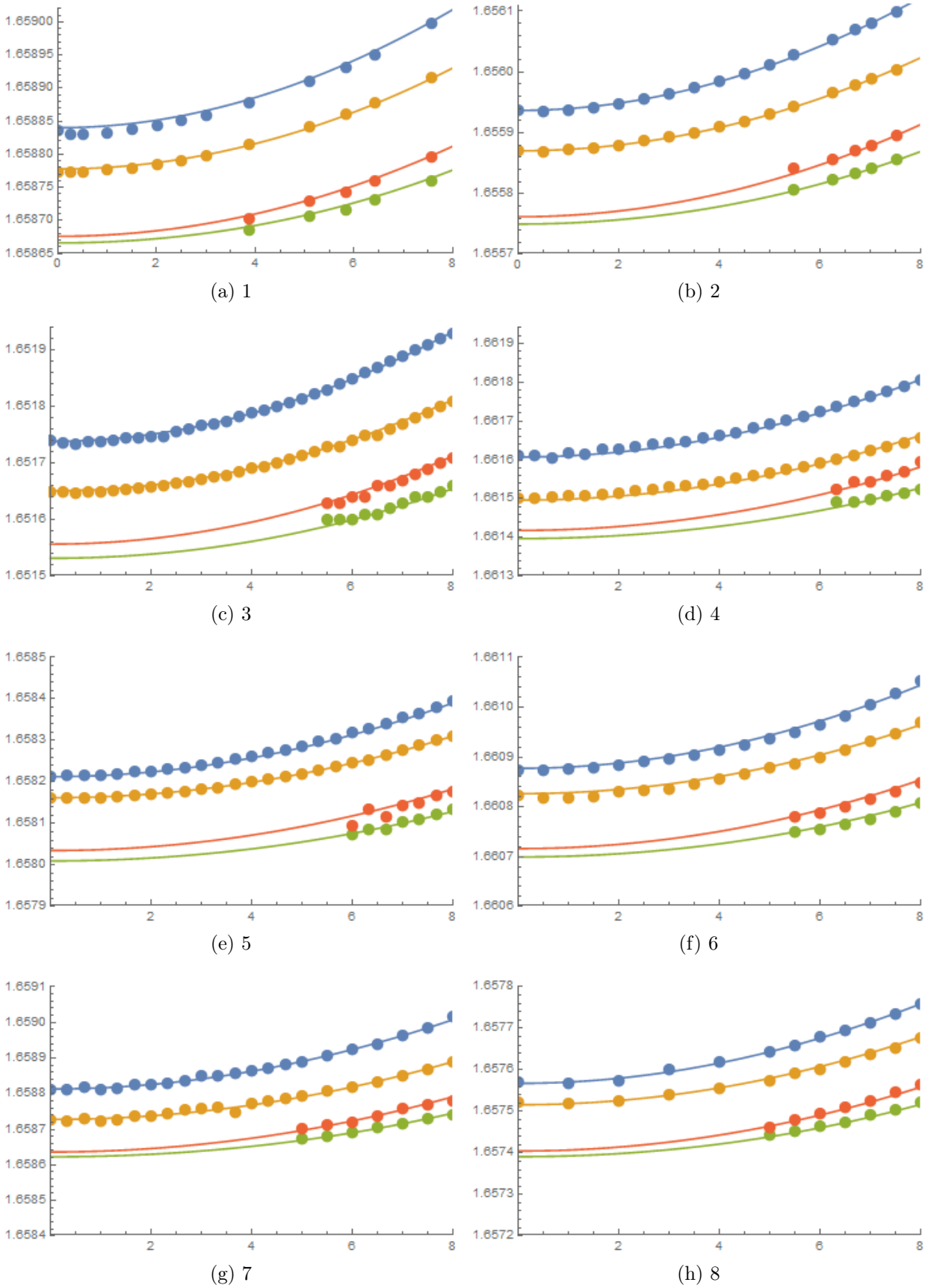


Figure 4.5.3: Ajustements pour 8 sur 9 boîtes (1 à 8 du tableau 4.10). Points - résultats expérimentaux, lignes - fonctions d'ajustement (expressions 4.3).

Echantillon	$\delta_0(\mu eV)$
GaAs/AlGaAs (nous)	138-165
InAs (nous)	275-344
InAs (littérature) [40, 119, 120]	300-450

Table 4.12: Comparaison des valeurs de  $\delta_0$  obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs

Les valeurs de  $\delta_0$  obtenues dans notre échantillon de boîtes InAs sont tout à fait comparables à celles obtenues précédemment. A noter que la dispersion pour notre échantillon est faible (pour 10 boîtes analysées), mais les valeurs maximales pour les boîtes InAs peuvent atteindre  $450 \mu eV$  [40], sous l'effet des contraintes. Pour les boîtes GaAs/AlGaAs, la dispersion de  $\delta_0$  est 138-165  $\mu eV$ , signature d'une forte homogénéité.

Les résultats pour le splitting entre les états noirs  $\delta_2$  sont présentés dans le tableau suivant:

Echantillon	$\delta_2(\mu eV)$
GaAs/AlGaAs (nous)	-25/-6
InAs (nous)	-15/-1
InAs (littérature) [40, 120]	0-100

Table 4.13: Comparaison des valeurs de  $\delta_2$  obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs avec des résultats dans la littérature pour les boîtes quantiques InAs/GaAs

On voit la même tendance pour les valeurs  $\delta_2$ , écart entre les deux branches noires. Les valeurs -25/-6  $\mu eV$  pour les boîtes GaAs/AlGaAs sont moins dispersées et, en général, plus petites que pour les boîtes InAs (0-100  $\mu eV$ ). Il faut noter que nos ajustements donnent une valeur négative de  $\delta_2$ . Une possible explication de ce résultat est liée aux termes de couplage supplémentaires et est donnée dans le chapitre 5.

Enfin, intéressons-nous à la valeur du décalage diamagnétique  $\kappa_x$ :

Echantillon	$\kappa_x(\mu eV/T^2)$ ,
GaAs/AlGaAs (nous)	2.2-2.6
InAs (nous)	3.9-4.8
InAs (littérature) [120]	5.3

Table 4.14: Comparaison des valeurs de  $\kappa_x$  obtenues par nous pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs et pour les boîtes quantiques InAs/GaAs

La valeur du décalage diamagnétique pour les boîtes GaAs/AlGaAs est plus petite que pour les boîtes InAs/GaAs, d'un facteur 2, ce qui indique une anisotropie de taille plus forte des boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous, si on considère les deux valeurs de  $\kappa_x$  obtenues pour deux configurations de champ.



Les shifts diamagnétiques ( $\kappa_x$  et  $\kappa_z$  ayant été mesurés pour nos boîtes GaAs/AlGaAs, revenons à l'expression 4.3.5. Dans l'hypothèse où  $\lambda \gg 1$ , on trouve:

$$\frac{\kappa_z}{\kappa_x} = \frac{1 \langle \rho^2 \rangle}{4 \langle z^2 \rangle} = \frac{\lambda^2}{4} \quad (4.5.1)$$

Expérimentalement,  $\frac{\kappa_z}{\kappa_x} \simeq 4$ , soit  $\lambda^2 = 16$  et  $\lambda = 4$  (une résolution numérique donne  $\lambda^2 = 12.6$  et  $\lambda = 3.5$ ). Ce facteur de forme met clairement en évidence la forme aplatie selon l'axe Oz des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs à base de nanotrous, comme observé par AFM (figure 2.1.7). La valeur trouvée pour  $\lambda$  est modérée et peut laisser penser, au vue des images AFM, que le champ a été appliqué selon la direction  $[110]$ , le facteur de forme obtenu étant plus en rapport avec les dimensions spatiales selon les axes  $[\bar{1}10]$  et  $[001]$  (figure 2.1.7). Cependant, d'autres mesures sont nécessaires pour confirmer.

Enfin, les valeurs suivants  $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle} \simeq 5$  nm et  $\sqrt{\langle z^2 \rangle} \simeq 1.5$  nm peuvent être estimées.

## 4.6 Conclusion

Nous avons étudié les états excitoniques en champ magnétique pour deux familles de boîtes - InAs/GaAs, boîtes quantiques de référence, et GaAs/AlGaAs, boîtes quantiques faisant l'objet de ce travail de thèse. Les résultats sur les boîtes InAs/GaAs, obtenus en configuration de champ magnétique longitudinal, ont permis de comparer notre expérience avec les études précédentes. Les paramètres physiques obtenus sont en accord avec la littérature, et montrent une assez nette dispersion pour les boîtes quantiques obtenues par croissance Stranski-Krastanov. Nous avons ensuite étudié les boîtes GaAs/AlGaAs pour deux configurations de champ magnétique - longitudinal (Voigt) et transverse (Faraday). L'étude d'une trentaine de boîtes a permis de réaliser une statistique suffisamment significative. Nous avons en particulier déterminé les nombreux paramètres physiques qui caractérisent les propriétés optiques et de spin de ces nouvelles boîtes: facteurs de Landé de l'exciton, de l'électron et du trou, décalage diamagnétique  $\kappa_x$ , paramètres de structure fine  $\delta_0$ ,  $\delta_1$  et  $\delta_2$ . Une homogénéité de ces différents paramètres a été observée, indiquant que la symétrie de boîtes non contraintes par nanotrous offre la possibilité de contrôler de façon reproductible la fabrication de boîtes. A noter que nos observations dans la configuration Voigt, peu utilisée dans la littérature, a permis une étude fine des excitons noirs, peu accessibles autrement.

## Chapitre 5

Polarisation de la luminescence des boîtes  
quantiques sous champ magnétique

## 5.1 Introduction

Dans le chapitre 4, nous avons mesuré des paramètres magnéto-optiques. Nous avons observé les branches excitoniques noires sur les spectres de luminescence en configuration Voigt. Pour expliquer la luminescence de ces branches noires, pour cette configuration de champ magnétique, Bayer et al. [40] a invoqué le mélange des états noirs et brillants. Les termes hors diagonaux de l'Hamiltonien Zeeman en champ transverse couplent les états noirs avec les états brillants. Dans ce modèle, la polarisation des états noirs est linéaire en l'absence de mélange de trous lourds et de trous légers. Comme nous le verrons, nos résultats montrent que la polarisation des états noirs peut changer fortement à grand champ magnétique, ce qui ne peut pas être expliqué par le modèle proposé par Bayer, qui restreint la symétrie effective des boîtes quantiques à la symétrie  $C_{2v}$ .

Dans ce chapitre, nous étudions des boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous. Nous allons présenter nos résultats sur la polarisation des états excitoniques à fort champ magnétique (configuration Voigt) et essayer d'appliquer un nouveau modèle théorique pour expliquer nos observations.

Tout au long de ce chapitre, nous allons prendre la notation suivante: les états excitoniques et les raies sur les spectres de photoluminescence seront nommés selon leur position en énergie (du haut en bas): BH (bright high), BL (bright low), DH (dark high) et DL (dark low).

NB: En toute rigueur, on ne peut parler des états excitoniques "noirs", ou optiquement inactifs, qu'en l'absence de champ magnétique, quand les termes de couplage de l'Hamiltonien Zeeman sont égaux à zéro. Le champ magnétique couple les états brillants avec les états noirs dans l'Hamiltonien Zeeman (comme montré dans le chapitre 4). Les états noirs deviennent des combinaisons linéaires des états  $|+1\rangle$ ,  $| -1\rangle$ ,  $|+2\rangle$ ,  $| -2\rangle$ , ce qui permet de les observer sur les spectres de photoluminescence, via les composantes brillantes  $|+1\rangle$ ,  $| -1\rangle$ .

Nous avons discuté dans le chapitre 3 que la symétrie effective des boîtes quantiques est réduite au groupe ponctuel  $C_{2v}$  en raison des contraintes ou de l'asymétrie d'interface. Cette dernière joue sans doute un rôle prépondérant pour les boîtes quantiques GaAs/AlGaAs non-contraintes. Dans le cas d'une symétrie  $C_{2v}$ , on s'attend à observer une polarisation particulière des branches brillantes et des branches noires: des états brillants polarisés linéairement (principalement polarisés selon les axes  $[110]$  et  $[\bar{1}\bar{1}0]$  [17, 132, 133]), et une luminescence des états noirs a priori polarisée linéairement, selon le couplage avec les composantes brillantes (à noter, comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, les axes des diagrammes de polarisation ne sont pas toujours alignés avec les directions cristallines).

## 5.2 Résultats expérimentaux

### 5.2.1 Polarisation de luminescence des branches excitoniques sous champ magnétique (Voigt)

L'échantillon avec des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs est le même que dans le chapitre 4. Dans ce chapitre, nous avons présenté nos études en champ magnétique qui nous ont permis de déterminer des paramètres magnéto-optiques pour deux familles de boîtes quantiques: boîtes InAs/GaAs auto-assemblées et boîtes GaAs/AlGaAs obtenues dans des nanotrous. A la suite de ces études, nous nous sommes intéressés aux propriétés de polarisation des états excitoniques en champ magnétique. Comme pour les mesures dans le chapitre 3, nous avons fait des séries de spectres de microphotoluminescence résolue en polarisation linéaire. La méthode pour ces mesures est similaire à celle présentée dans le chapitre 3: nous tournons une lame  $\lambda/2$  (qui est suivie par un polariseur linéaire) pour enregistrer des spectres de photoluminescence pour les angles d'analyse du polariseur linéaire dans un intervalle de 360 degrés.

Nous avons analysé les spectres de photoluminescence de 20 boîtes quantiques GaAs/AlGaAs (nanotrous). Pour ces 20 boîtes, nous avons fait des diagrammes de polarisation en fonction de l'angle d'analyse. Selon le modèle présenté dans le chapitre 4, le couplage entre les états brillants et les états noirs est induit par les termes de l'hamiltonien Zeeman; on s'attend à ce que les états noirs aient une polarisation linéaire comme les états brillants. Cependant, les résultats expérimentaux varient largement sur l'ensemble de ces 20 boîtes analysées. Pour certaines boîtes, nous observons que les diagrammes de polarisation, pour l'état noir à plus haute énergie, s'ouvrent et deviennent même circulaires. Dans quelques diagrammes, deux états noirs ont une polarisation linéaire, mais les axes de ces diagrammes sont presque identiques (même orientation). Nous allons présenter tous les types de diagrammes polaires dans les paragraphes suivants.

La figure 5.2.1 présente une boîte pour laquelle nous avons observé une polarisation circulaire de l'état DH. Nous voyons un spectre en code couleur similaire à ceux présentés dans le chapitre 4 (figure 5.2.1 (a)). Quatre états excitoniques sont bien résolus, avec les états noirs visibles à partir de 3 T. La figure (5.2.1 (b)) présente le diagramme de polarisation en code couleur, prise à 8 T pour cette même boîte. Sur ce diagramme, nous pouvons voir que l'intensité des états brillants (deux raies à plus haute énergie) varie avec l'angle d'analyse; ce comportement correspond à la polarisation linéaire de ces raies (nommées BH et BL). Le même comportement est observé pour la raie qui se trouve le plus bas en énergie (nommée DL). Par contre, l'intensité de la raie DH sur ce diagramme ne change presque pas pour toute la gamme d'angles d'analyse.

Pour chaque angle d'analyse, nous faisons des ajustements de pics par des fonctions lorentziennes. Ensuite, nous utilisons ces valeurs pour construire des diagrammes de polarisation. Les figures 5.2.1 (c) et (d) présentent le résultat de ces ajustements pour la boîte présentée dans la même figure 5.2.1 (a-b). Nous voyons sur ces diagrammes que seul le diagramme de l'état DH forme un cercle.

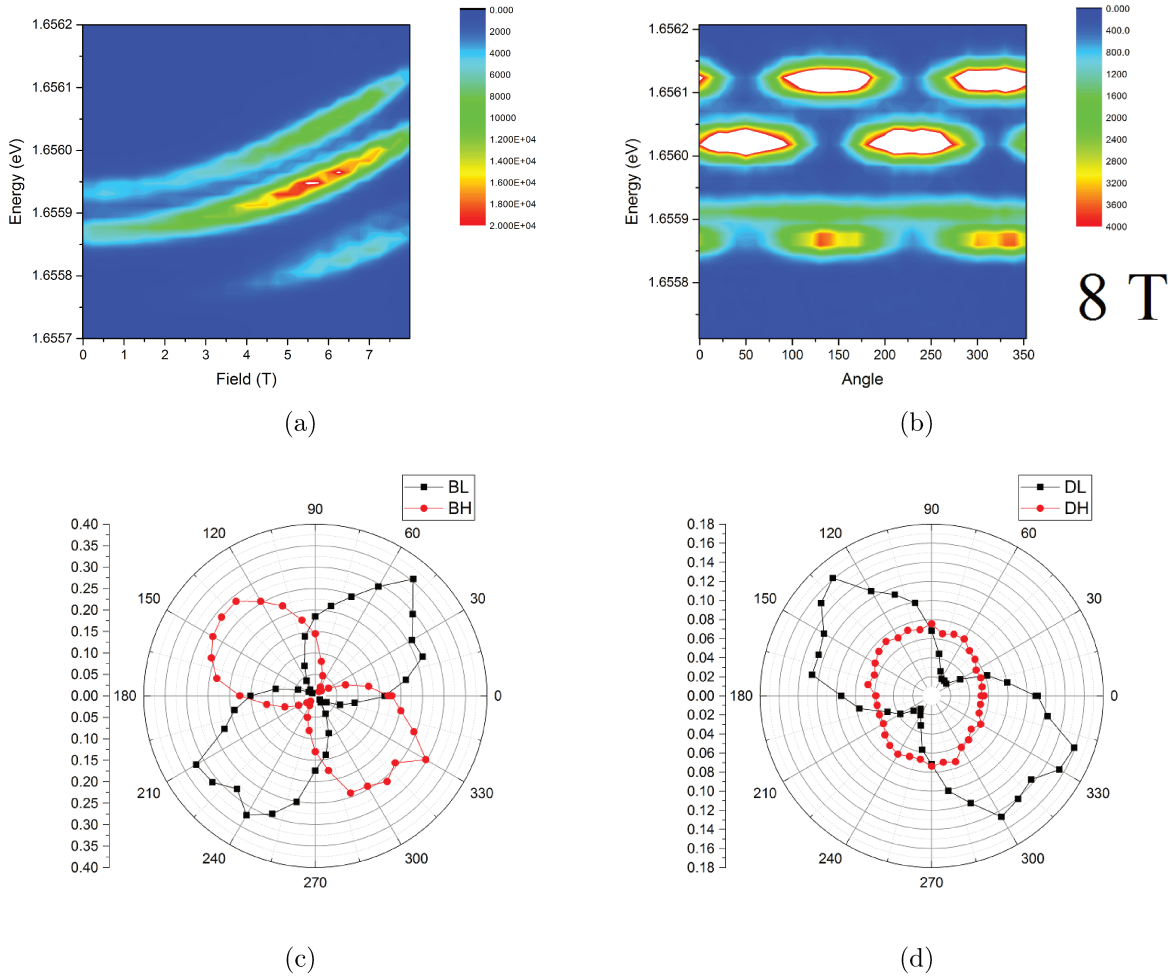


Figure 5.2.1: (a) Spectre de luminescence d'une boîte GaAs/AlGaAs en fonction du champ magnétique. Analyse de la polarisation pour une boîte GaAs/AlGaAs. (b) Spectre 2d en code couleur à 8 T (c) Diagramme de polarisation à 8 T - ajustement des états brillants (d) Diagramme de polarisation à 8 T - ajustement des états noirs. Excitation à 638 nm avec la puissance 60  $\mu W$ .

Cette forme de diagramme polaire n'est pas observée pour toutes les boîtes analysées. Nous allons organiser nos résultats de la manière suivante:

Dans le premier groupe, nous allons mettre les diagrammes où tous les quatre états sont polarisés linéairement, le comportement qui a été anticipé. Les diagrammes de polarisation pour deux boîtes de ce groupe sont présentés dans la figure 5.2.2. Le deuxième groupe va être formé par les diagrammes où l'état noir DH est polarisé circulairement. Les diagrammes de polarisation pour deux boîtes de ce groupe sont présentés

dans la figure 5.2.3 .

Le troisième groupe sera composé des boîtes pour lesquels la polarisation des états noirs (et surtout de l'état DH) est linéaire, mais la polarisation de DH est alignée différemment de BL. Les diagrammes de polarisation pour deux boîtes de ce groupe sont présentés dans la figure 5.2.4.

Dans le quatrième et le dernier groupe, nous allons mettre des résultats intermédiaires. En effet, les diagrammes de l'état DH dans ce groupe ne sont ni linéaires, ni circulaires, mais semblent avoir la forme d'un ellipse, qui peut correspondre à une forme intermédiaire entre les cas limites des groupes 1, 2 et 3. Les diagrammes de polarisation pour deux boîtes de ce groupe sont présentés dans la figure 5.2.5.

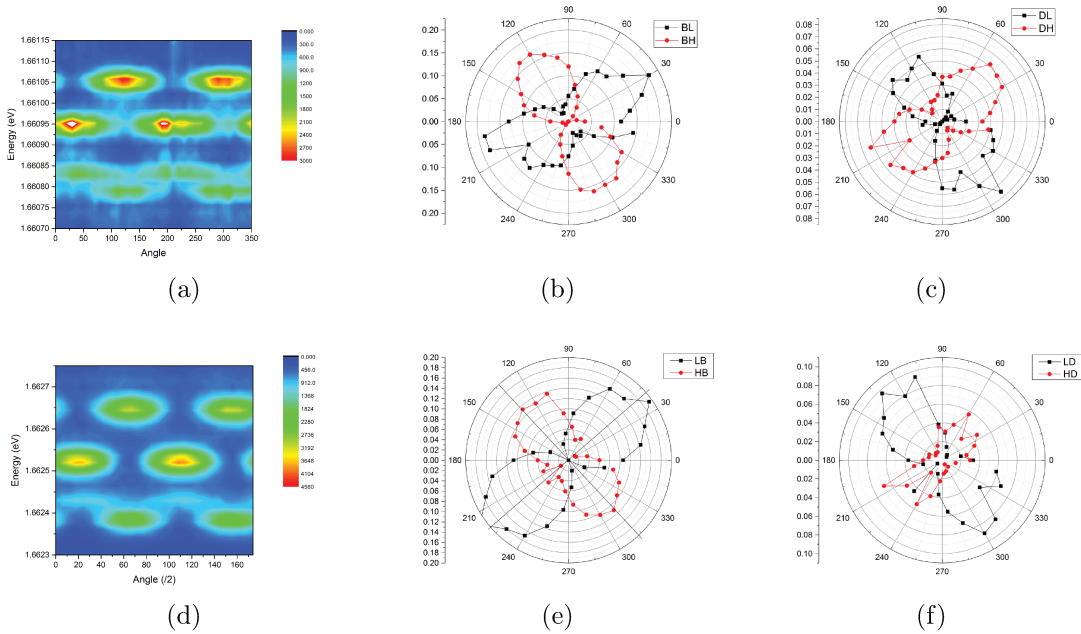


Figure 5.2.2: Spectres de photoluminescence (a, d) et diagrammes de polarisation correspondants - les états brillants (b, e) et les états noirs (c, f), l'état DH est polarisé linéairement (groupe 1).

## 5.2.2 Discussion sur les résultats expérimentaux

Nous allons tout d'abord nous intéresser aux travaux théoriques, issus de la référence Zielinski et al. [134]. Les auteurs introduisent des paramètres de couplage des états noirs et brillants dans l'Hamiltonien d'échange électrons-trous, qui apparaissent en raison de la réduction de symétrie effective des boîte (à  $C_s$ ). Nous avons discuté, dans le chapitre 3, les effets qui réduisent la symétrie effective des boîtes même dans le cas de forme symétrique.

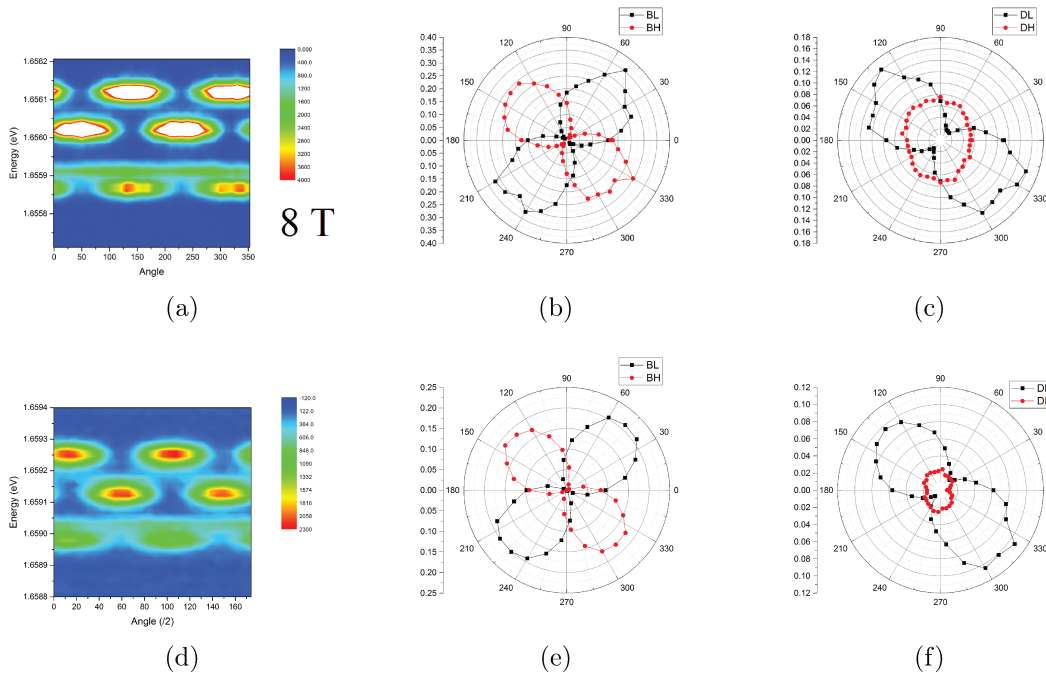


Figure 5.2.3: Spectres de photoluminescence (a, d) et diagrammes de polarisation correspondants - les états brillants (b, e) et les états noirs (c, f), l'état DH a une polarisation circulaire (groupe 2).

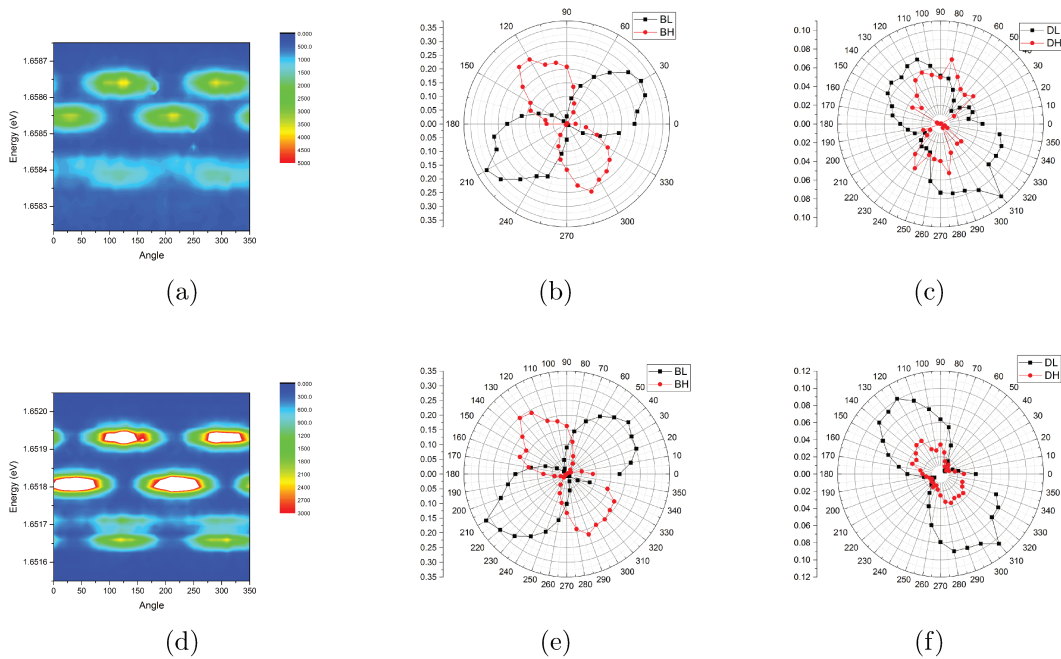


Figure 5.2.4: Spectres de photoluminescence (a, d) et diagrammes de polarisation correspondants - les états brillants (b, e) et les états noirs (c, f), l'état DH est polarisé linéairement mais tourné par rapport à l'état BL (groupe 3).

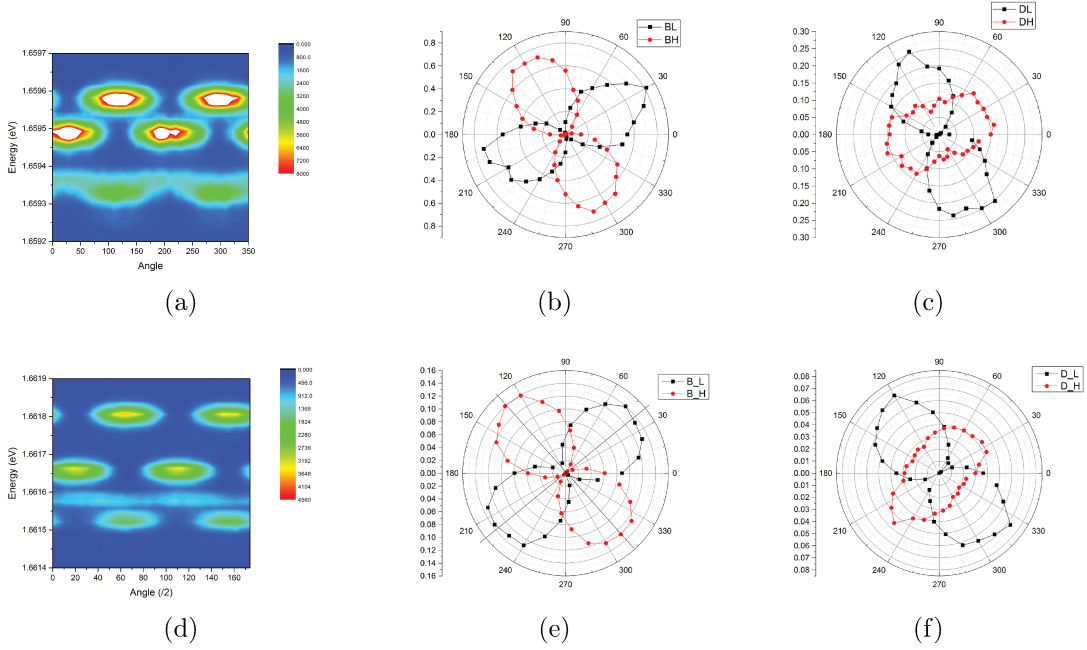


Figure 5.2.5: Spectres de photoluminescence (a, d) et diagrammes de polarisation correspondants - les états brillants (b, e) et les états noirs (c, f), le diagramme de l'état DH est "ouverte" (groupe 4).

L'hamiltonien d'interaction d'échange pour une boîte  $C_{2v}$  s'écrit [134]:

$$H_{C_{2v}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \Delta_1 & 0 & 0 \\ \Delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \Delta_2 \\ 0 & 0 & \Delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (5.2.1)$$

Les éléments de matrice sont obtenus par des calculs atomistiques "tight binding" spds\*. Dans ces calculs, Zielinski et al [134] prennent les états BH, BL, DH et DL comme les états propres. Ces états ne sont pas des fonctions propres de moment angulaire, contrairement à la base  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$ , où les états avec  $M = \pm 1$  sont les états brillants et les états avec  $M = \pm 2$  sont les états noirs. Les paramètres dans l'hamiltonien ont la même signification que dans le chapitre 4:  $\Delta_0$  est l'écart entre les états noirs et brillants,  $\Delta_1$  est le FSS des états brillants, et  $\Delta_2$  est le splitting des états noirs. Les phases dans l'Hamiltonien 5.2.1 ont été choisies telles que les états propres brillants polarisés linéairement à champ magnétique nul,  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ , soient orientés selon les directions  $[110]$  ou  $[1\bar{1}0]$ <sup>1</sup>.

Dans cet hamiltonien, les termes relatifs au couplage entre les états noirs et brillants sont nuls, ce qui signifie l'absence de mélange. Maintenant, revenons à la discussion sur la symétrie effective des boîtes quantiques. Nous avons dit que, même pour les boîtes

<sup>1</sup>A noter que dans la réf. [134], une phase en  $\pi/2$  apparaît sur certain coefficient de  $H_{C_{2v}}$ , car les auteurs ont choisi comme axe de quantification  $[100]$  et  $[010]$ .



qui ont une symétrie nominale  $D_{2d}$ , la symétrie effective est réduite ( $C_{2v}$ ). Maintenant, considérons le cas où la symétrie peut être encore réduite à  $C_s$  (dans ce cas les moments dipolaires dans le plan ne sont pas nuls). Ceci ajoute des termes hors diagonaux à l'hamiltonien 5.2.1. Il s'écrit ainsi:

$$H_{C_s} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \Delta_1 & \Delta_{11} & -\Delta_{12} \\ \Delta_1 & \Delta_0 & \Delta_{12} & -\Delta_{11} \\ \Delta_{11} & \Delta_{12} & -\Delta_0 & \Delta_2 \\ -\Delta_{12} & -\Delta_{11} & \Delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (5.2.2)$$

La valeur du mélange brillant-noir est définie par les termes  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$ . Maintenant, la structure de l'hamiltonien ressemble à l'hamiltonien pour la configuration Voigt de champ magnétique, quand on prend la somme de l'hamiltonien d'échange avec l'hamiltonien d'interaction Zeeman (expression 4.2.8).

### 5.3 Modélisations

Les résultats (i.e. les diagrammes de polarisation) pour un seul champ (8T) ne donnent pas d'information sur l'évolution des états. Pour essayer de mieux comprendre les diagrammes différents que nous avons obtenus, nous avons effectué des modélisations numériques. Pour ces modélisations, nous prenons un hamiltonien avec des paramètres introduits dans la référence [134]. Les valeurs  $\Delta_0$ ,  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  sont obtenues expérimentalement ( $\Delta_1$  est mesuré directement,  $\Delta_0$  et  $\Delta_2$  sont déterminés par ajustement). Nous prenons aussi des valeurs de décalage diamagnétique typique, précédemment obtenues et présentées dans le chapitre 4.

Ensuite, nous choisissons différentes combinaisons des paramètres de couplage  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$ . Pour ces combinaisons, nous varions le champ magnétique pour voir l'évolution des diagrammes de polarisation. Les résultats de ces modélisations montrent qu'à certaines valeurs de champ, les diagrammes de polarisation changent, surtout pour l'état noir de plus haute énergie (DH). Le nombre de transitions entre une polarisation linéaire et circulaire de l'état DH varie selon les valeurs de  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$  absolues et relatives, ainsi que leurs signes.

Le premier résultat que l'on observe est le décalage des énergies d'émission des états  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle$  et  $|-2\rangle$ . En l'absence de couplage noir-brillant ( $\Delta_{11} = \Delta_{12} = 0$ , les paramètres  $\delta_i$  (du chapitre 4) et  $\Delta_i$  sont égaux. En présence du couplage noir-brillant,  $\delta_i \neq \Delta_i$  et le splitting effectif  $\delta_i$  est fonction de  $(\Delta_i, \Delta_{11}, \Delta_{12})$ . Ceci peut expliquer les valeurs négatives du paramètre  $\delta_2$  (l'écart entre les énergies des états  $|+2\rangle$  et  $|-2\rangle$ )

obtenues avec des ajustements dans le chapitre 4. Il faut alors s'assurer que les courbes finales ajustées avec les paramètres choisis correspondent aux résultats expérimentaux pour les énergies d'émission. La valeur de  $\delta_1$  (l'écart entre les énergies des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ ) est mesurée directement à 0T et donc ne change pas. Par contre, les valeurs de  $\Delta_0$  et  $\Delta_2$  sont modifiées par ces nouveaux termes de couplage introduits.

### 5.3.1 Evolution des diagrammes de polarisation en champ magnétique (configuration Voigt)

Le premier but de nos modélisations est de reproduire les diagrammes de polarisation circulaires pour l'état DH et étudier leur évolution en champ magnétique. La figure 5.3.1 présente les résultats de modélisation pour les meilleurs paramètres obtenus en considérant tout ce qui a été discuté dans les paragraphes précédents. Nous pouvons reproduire une transition pour un champ magnétique d'environ 8T avec les paramètres suivants:  $\Delta_{11} = 56\mu eV$  et  $\Delta_{12} = 76\mu eV$ . Ces paramètres donnent un résultat de l'état DH polarisé circulairement, et de l'état DL polarisé quasilinearément, ce qui correspond aux résultats expérimentaux. Les valeurs des facteurs de Landé de l'électron  $g_e$  et du trou  $g_h$  sont dans la gamme des valeurs obtenues dans le chapitre 4:  $g_e$  entre 0.14 et 0.23,  $g_h$  entre 0.2 et 0.3.

Le comportement souhaité (polarisation circulaire de l'état DH) est reproduit avec cette combinaison de paramètres, mais nous voyons aussi qu'il existe encore une transition à environ 3T, en plus du diagramme circulaire de l'état DH à 8 T. Nos résultats expérimentaux ne permettent pas de vérifier si cette transition existe à cette valeur de champ magnétique, car nous n'observons la luminescence des branches noires qu'à partir de 4-5T. Les trois autres états sont polarisés linéairement pour toute la gamme des valeurs de champ, de 0 à 10T. Cependant, il faut noter que, en changeant les paramètres d'ajustement, nous pouvons changer aussi la polarisation de l'état DL. Nous allons discuter ces effets dans les paragraphes suivants.

Une conclusion que l'on peut tirer à partir de cette modélisation, est que les diagrammes avec des polarisations différentes de l'état DH correspondent aux différents points de l'évolution présentée sur la figure 5.3.1. Il est alors important de comprendre quels paramètres changent les valeurs de champ correspondant aux transitions linéaire-circulaire.

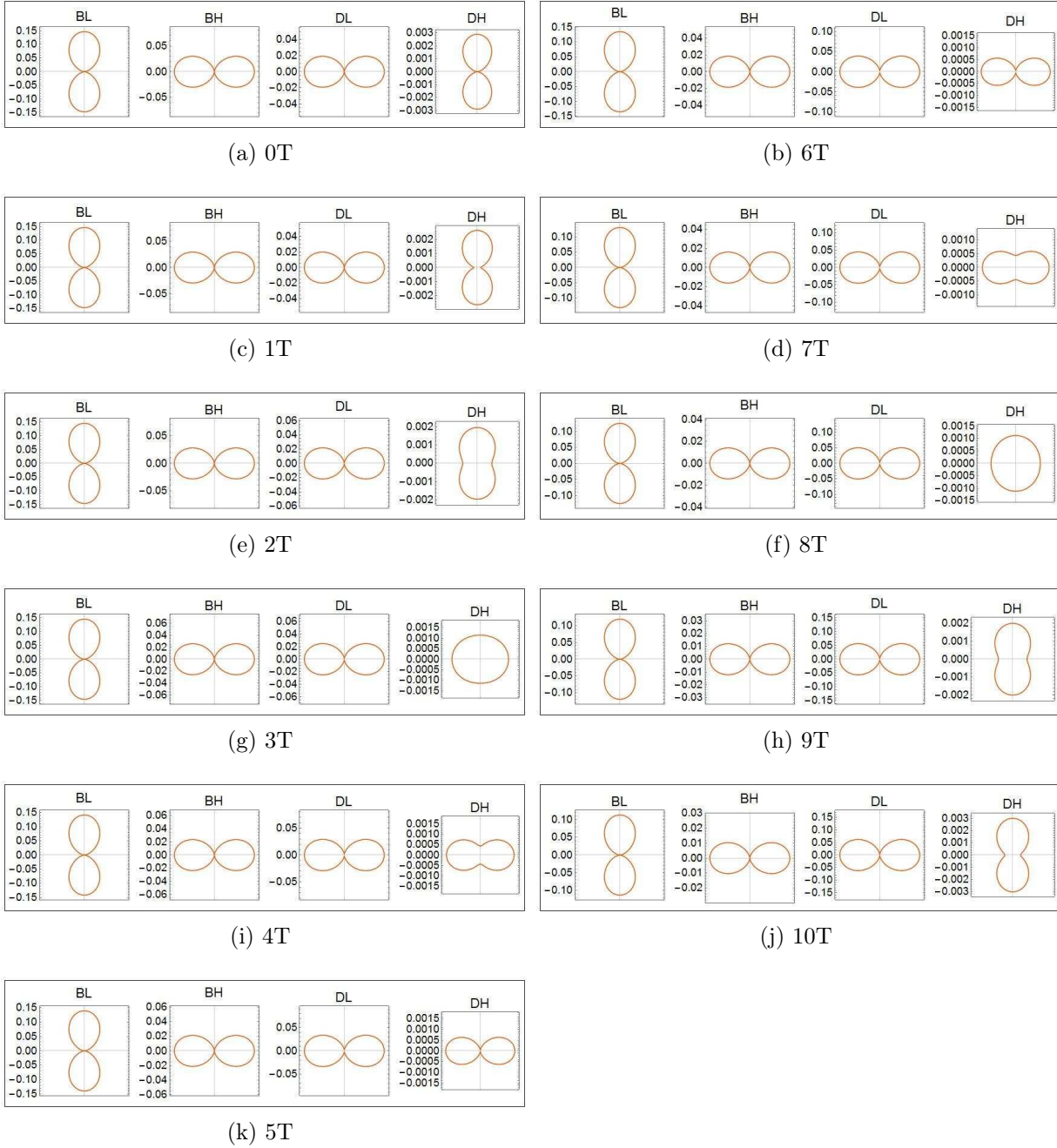


Figure 5.3.1: Diagrammes de polarisation de l'émission des 4 états excitoniques pour les valeurs de champ magnétique de 0 à 10T avec un pas de 1T (modélisation). Paramètres utilisés:  $\Delta_0 = 148\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_1 = 66\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_2 = -12\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_{11} = 56\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_{12} = 76\mu\text{eV}$ ,  $g_e = 0.2$ ,  $g_h = 0.25$  (boîte 2, table 4.10).

### 5.3.2 Poids des composantes brillantes pour les états noirs: intensité de photoluminescence.

Nous allons nous intéresser aux effets de ce couplage sur les spectres de photoluminescence et les intensités des raies en particulier. La figure 5.3.2 montre le résultat de la modélisation pour la boîte dont les spectres sont présentés dans la figure 5.2.1.

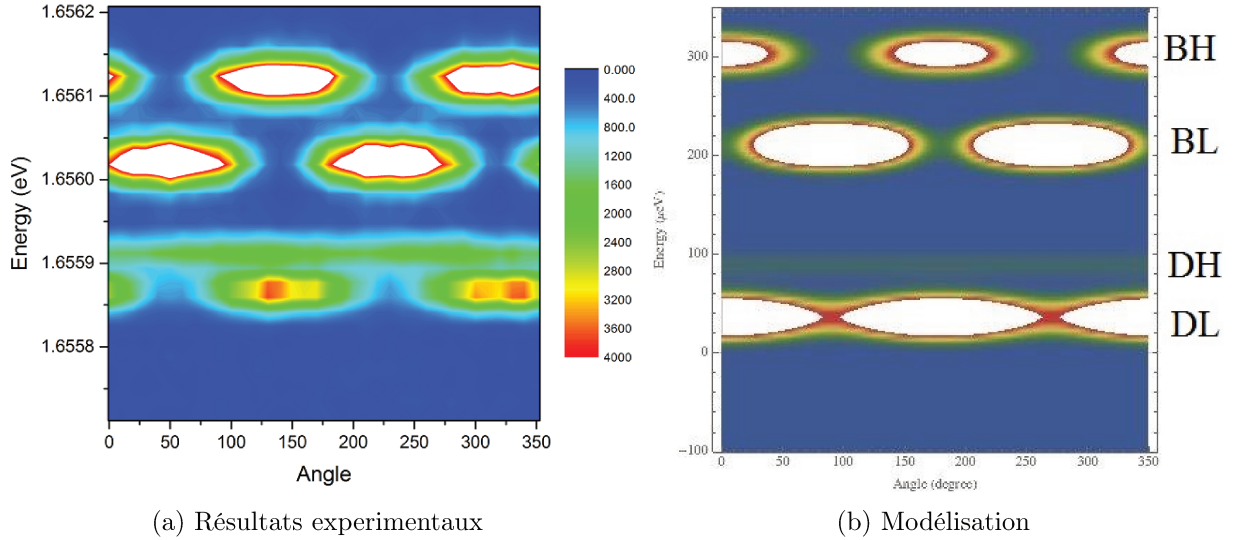


Figure 5.3.2: Modélisation des diagrammes de polarisation pour une boîte GaAs/AlGaAs. (a) Résultats expérimentaux (b) Modélisation (mêmes paramètres que pour la figure 5.3.1).

Nous voyons que sur les spectres modélisés, l'intensité de la raie DH est très faible par rapport aux intensités de trois autres raies (et relativement plus faible que sur les spectres expérimentaux). Pour essayer de mieux expliquer nos observations et à partir des modélisations précédentes de ce chapitre, nous allons considérer les contributions des composantes brillantes aux états noirs.

Si l'on considère le couplage entre les états noirs et les états brillants, les états DL et DH peuvent être représentés comme des superpositions des états de base  $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$ :

$$\begin{aligned} |DL\rangle &= \alpha_1 |+1\rangle + \beta_1 |-1\rangle + \gamma_1 |+2\rangle + \xi_1 |-2\rangle \\ |DH\rangle &= \alpha_2 |+1\rangle + \beta_2 |-1\rangle + \gamma_2 |+2\rangle + \xi_2 |-2\rangle \end{aligned} \quad (5.3.1)$$

Ici les paramètres  $|\alpha_i|^2, |\beta_i|^2, |\gamma_i|^2, |\xi_i|^2$  sont les poids des états de base pour les états DL et DH. Nous varions la valeur du champ magnétique pour obtenir les valeurs de ces paramètres pour toute la gamme du champ, de 0 à 10T. Nous prenons les mêmes valeurs des paramètres  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$  avec lesquelles nous obtenons une polarisation circulaire pour l'état DH et quasilinearé de l'état DL. Les résultats des modélisations sont présentés dans la figure 5.3.3.

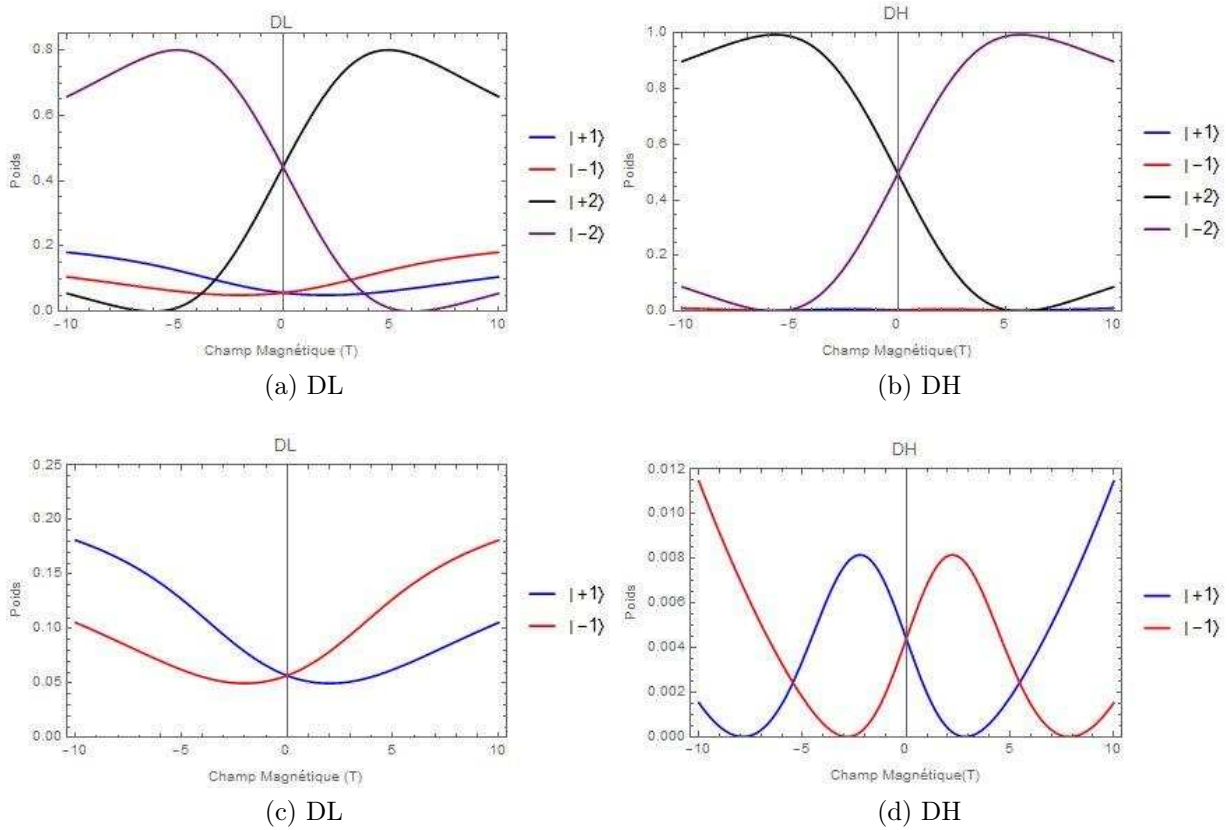


Figure 5.3.3: Modélisation du poids des états  $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$  pour les états DL et DH. Les paramètres utilisés:  $\Delta_{11} = 56\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_{12} = 76\mu\text{eV}$ , les autres paramètres correspondent à la boîte 2 dans la table 4.10. (a, b) les 4 paramètres sur un graphique (c, d) zoom des courbes pour les poids des composantes  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ .

La polarisation de la luminescence est définie par les composantes “brillantes”. Si une composante  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  est égale à zéro ( $|\alpha_i|^2$  ou  $|\beta_i|^2 = 0$ ), la luminescence est polarisée circulairement. Si les poids sont égaux, la polarisation de luminescence est linéaire. Alors la forme des diagrammes peut être défini par le ratio du poids des composantes brillantes.

Nous voyons ainsi dans la figure 5.3.3 (c) que les deux composantes brillantes de cet état DL sont relativement proches en valeurs (les poids sont respectivement 0.11 et 0.18 pour le champ magnétique de 10 T). Ceci correspond à la polarisation de l’état DL quasilineaire pour toute la gamme de valeurs de champ magnétique; le diagramme de polarisation correspondant est un peu ouvert (le ratio des poids varie de 1 à 1.7).

Les poids relatifs des composantes brillantes pour l’état DH changent avec le champ. A 0 T, les poids de composantes  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  sont égaux, ce qui correspond à la polarisation linéaire de cet état. Si l’on augmente le champ, le poids de la composante  $|+1\rangle$  diminue rapidement, jusqu’à zéro. A ce point, le diagramme de l’état DH devient circulaire; les propriétés de photoluminescence de cet état à 3 T sont définies par la composante  $|-1\rangle$ . Ensuite, nous voyons que la valeur du poids de  $|+1\rangle$  augmente, et le poids de  $|-1\rangle$  diminue et devient zéro à 8 T, ce qui correspond aussi à la polarisation circulaire, mais cette fois la composante  $|+1\rangle$  est dominante. Ainsi les deux points pour lesquels le diagramme de l’état DH est circulaire, correspondent ainsi à deux polarisations différentes ( $\sigma^\mp$  et  $\sigma^\pm$  pour  $\pm 3$  T et  $\pm 8$  T).

Sur la même figure, on peut voir que les poids des composantes  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  sont beaucoup plus faibles que les poids des composantes  $|+2\rangle$  et  $|-2\rangle$ . De plus, les poids des composantes brillantes sont compris dans l’intervalle 0.05-0.18 pour l’état DL et dans l’intervalle 0-0.012 pour l’état DH, donc un ratio  $\simeq 15$ . Ceci se traduit par une intensité plus faible de la raie DH par rapport à l’intensité de la raie DL.

Un dernier résultat est que pour le champ inversé les diagrammes de polarisation restent principalement similaires, mais les poids relatifs s’inversent. Nous voyons cela sur la figure 5.3.3: les courbes pour les champs négatifs répètent leur forme dans la région de champ positif. Ce comportement est observé pour nos modélisations des états DL et DH. Ce résultat signifie que des mesures en champ magnétique avec deux directions de champ appliqué pourront donner une information supplémentaire pour vérifier ce modèle.

### 5.3.3 Poids des composantes brillantes pour les états noirs: influence des facteurs de Landé $g_e$ et $g_h$

Maintenant, nous allons voir quel effet ont les facteurs de Landé sur les poids des états DL et DH et sur l'intensité des raies. Nous allons prendre les valeurs réelles de  $g_e$  et  $g_h$  pour la boîte que nous venons d'analyser et ajouter une deuxième combinaison de paramètres à l'extrémité de la gamme des valeurs expérimentales. Cette comparaison est montrée dans la figure 5.3.4

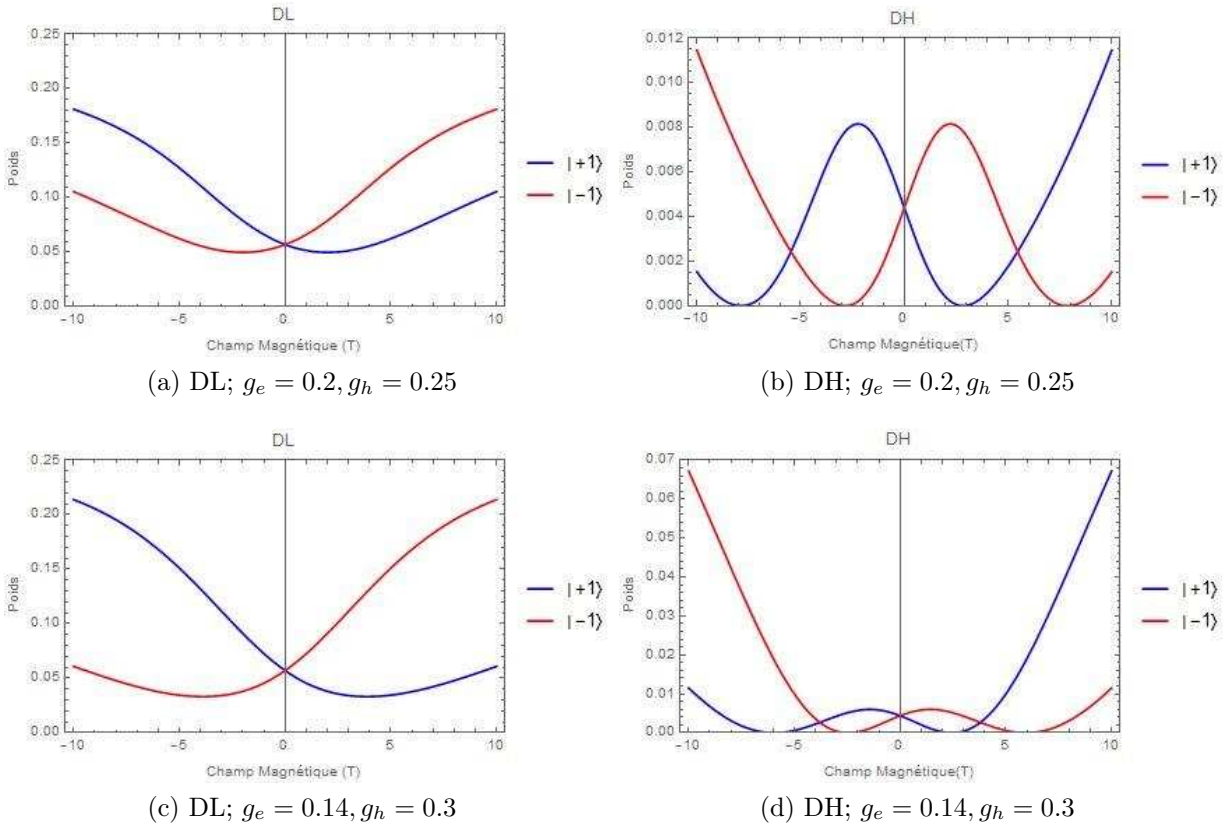


Figure 5.3.4: Modélisation de poids des états  $|+1\rangle$ ,  $|-1\rangle$  pour les états DL et DH, pour deux combinaisons de valeurs des facteurs de Landé.  $\Delta_{11} = 56\mu\text{eV}$ ,  $\Delta_{12} = 76\mu\text{eV}$ , les autres paramètres correspondent à la boîte 2 dans la table 4.10.

Ici nous voyons les diagrammes pour les poids de composantes  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  pour les états DL et DH. Deux paires de diagrammes correspondent à deux combinaisons de paramètres de modélisation, mais la différence entre ces deux combinaisons porte sur les facteurs de Landé  $g_e$  et  $g_h$ . Nous pouvons constater que les valeurs relatives et absolues des poids dépendent largement de  $g_e$  et  $g_h$ : en changeant  $g_e$  de 0.2 à 0.14 et  $g_h$  de 0.25 à 0.3, nous avons pu augmenter le poids de la composante brillante  $|+1\rangle$  par un facteur 6, les intensités de raies DL et DH sont alors plus proches des ratios obtenus expérimentalement (environ 3, comparé aux résultats expérimentaux: nous trouvons le ratio entre les intensités des raies DL et DH dans l'intervalle 2-4). Cependant, ce changement des

facteurs de Landé change aussi le ratio des composantes brillantes pour l'état DL (figure 5.3.4, (a) et (c)). Ceci signifie que les diagrammes de l'état DL vont s'ouvrir si une composante brillante devient faible et si le ratio entre les composantes brillantes augmente. Dans nos résultats expérimentaux, nous observons que, en accord avec cette hypothèse, les diagrammes de polarisation de l'état DL pour certaines boîtes sont "ouverts" (figures 5.2.3, 5.2.4).

Il faut noter que le ratio du poids des composantes  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  atteint des valeurs assez grandes, favorisant une émission elliptique de DL, ce qui n'est que partiellement observé. Il faut cependant noter que nous n'avons eu accès aux diagrammes de polarisation que pour un champ de 8 T (ces campagnes de mesures ayant été perturbées par de grosses pannes sur le Spectromag). Des informations sur une plus grande plage de champs permettraient d'améliorer la modélisation. De plus, pour expliquer l'ouverture des diagrammes et leur rotation, nous pouvons invoquer les effets de mélange de bandes de trous lourds et de trous légers discutés dans le chapitre 3 et non inclus dans ce modèle. Pour les boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous, la valeur du paramètre  $\beta$ , qui indique le degré de mélange, a une faible dispersion et une valeur moyenne d'environ 0.1, non négligeable et susceptible d'influencer la polarisation, comme observé à 0 T. Un modèle plus complet reste à développer.

### 5.3.4 Etats propres en champ Faraday: influence des termes de couplage

Finalement, nous allons présenter quels effets ont ces termes de couplage sur les diagrammes des énergies des états propres en configuration Faraday. Deux graphiques montrant la différence induite par les paramètres de couplage, sont présentés dans la figure 5.3.5.

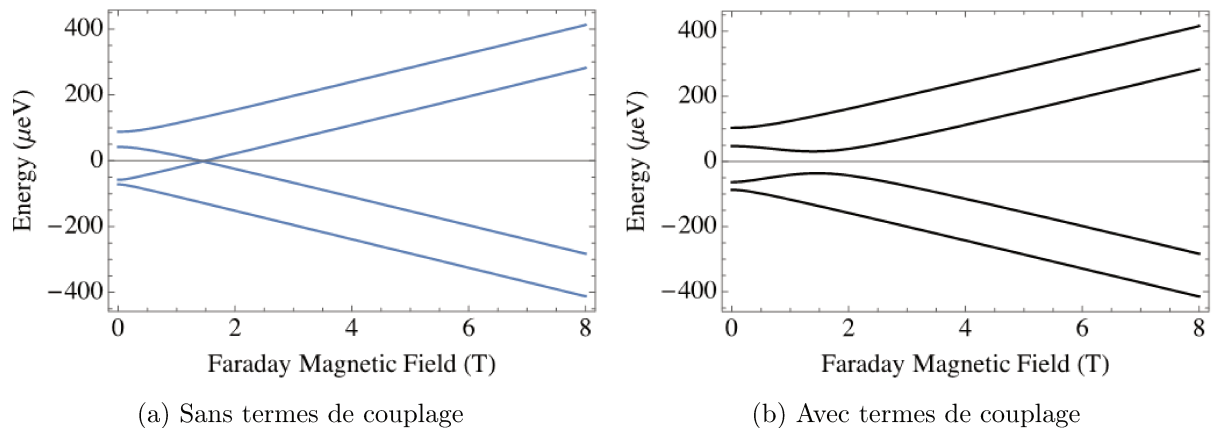


Figure 5.3.5: Modélisation des énergies des états  $|BH\rangle$ ,  $|BL\rangle$ ,  $|DH\rangle$ ,  $|DL\rangle$  en configuration de champ magnétique Faraday, sans contribution du décalage diamagnétique.



La figure 5.3.5 (gauche) est similaire à celle présentée dans le chapitre 4 pour les états propres en configuration Faraday (figure 4.2.1). La figure à droite est obtenue en modélisant ces mêmes états avec les termes de couplage  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$ . Avant de discuter l'influence de ces termes, nous allons ajouter le décalage diamagnétique, ce qui donnera un résultat plus proche des résultats expérimentaux. La modélisation des états en configuration Faraday avec une contribution du décalage diamagnétique est présentée sur la figure 5.3.6.

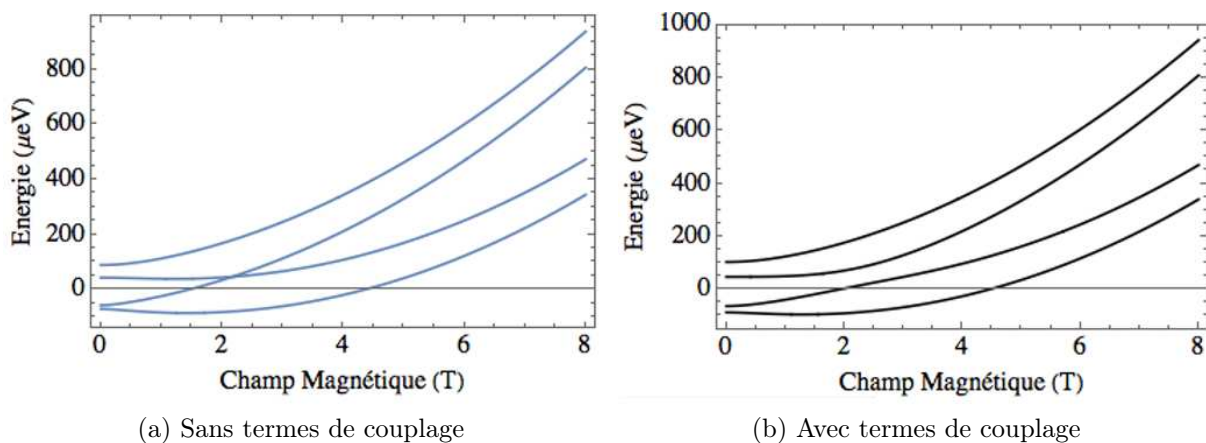


Figure 5.3.6: Modélisation des énergies des états  $|BH\rangle, |BL\rangle, |DH\rangle, |DL\rangle$  en configuration de champ magnétique Faraday, avec la contribution du décalage diamagnétique  $\kappa_z = 10\mu\text{eV}/\text{T}^2$ .

A partir de la figure 5.3.6, nous pouvons conclure qu'il doit exister une région de champ (entre 2 et 3T selon nos modélisations) où un anticroisement d'un état brillant et un état noir peut être observé. En l'absence de ces termes de couplage, les graphiques sont similaires à ceux de la référence [40], présentés dans le chapitre 4 (figure 4.2.1). Si nous ajoutons les termes de couplage, nous voyons un anticroisement des branches noires et brillantes.

Un anticroisement d'une branche noire et une branche brillante a été observée par Bayer et al (référence [40]). Dans ce travail la présence d'anticroisement a été expliquée par une forte brisure de symétrie de la boîte. Nous n'avons pas pu trouver ces points de manière définitive, comme nous n'avons pas observé de raies de luminescence des états noirs en champ Faraday. Pour mieux déterminer ce comportement, il faudrait faire une analyse de cette région de champ avec des pas plus fins. Bien que plus contraignant expérimentalement (signal des états noirs faible par rapport à la configuration Voigt), l'observation de cet anticroisement permettrait une mise en évidence du couplage noir-brillant et une détermination plus directe des paramètres  $\Delta_{11}$  et  $\Delta_{12}$  (par rapport à l'analyse en polarisation précédente). Améliorer le niveau de photoluminescence des états noirs pourrait se faire par la réalisation d'un échantillon avec une microcavité, comme dans notre échantillon de boîtes InAs ou dans ceux qu'on peut trouver dans la littérature

[135].

## 5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté des résultats expérimentaux portant sur l'évolution de l'émission polarisée des états excitoniques brillants et noirs, en présence d'un champ magnétique (configuration Voigt). Nous avons en particulier observé que la raie DH pouvait présenter une polarisation elliptique ou circulaire à fort champ (8 T), et de façon reproductible sur un large ensemble de boîtes GaAs/AlGaAs.

La modélisation communément utilisée de ce système, incluant interaction d'échange et effet Zeeman, et décrite au chapitre 4, a permis de déterminer des paramètres physiques ( $g_e$ ,  $g_h$ ,  $\kappa$ ...) mais échoue à rendre compte de ces effets en polarisation. Il est apparu nécessaire d'inclure à notre modélisation des termes de couplage supplémentaires entre excitons noirs et brillants, comme décrit très récemment par Zielinski et al. [134]. Nos calculs permettent de reproduire nos observations et en particulier la modulation de la polarisation de l'état DL par un champ magnétique. A noter que ce comportement est impossible à obtenir par le modèle "standard" (chapitre 4) qui prédit une polarisation linéaire, indépendante du champ pour les 4 états excitoniques.

N'ayant obtenu des résultats qu'à fort champ (8 T), il apparaît nécessaire, à l'avenir, de réaliser des études plus systématiques en champ, afin d'affiner l'analyse, et observer un champ critique prédit à bas champ.

Nos calculs indiquent également que des mesures en configuration Faraday offrent des perspectives et devraient donner un accès plus direct aux termes de couplage noir-brillant, grâce à une analyse en énergie et non plus en polarisation.

Pour ces deux études, on s'attend à un faible signal des états noirs. La mise en cavité des boîtes GaAs/AlGaAs apparaît comme une solution prometteuse.



## Chapitre 6

Spectroscopie des états chargés dans un système de 2 boîtes quantiques (molécule)

## 6.1 Introduction

L'intérêt grandissant pour les boîtes quantiques, en opto-électronique et information quantique, a conduit rapidement à la nécessité de contrôler une charge unique, et par la même, au contrôle d'un spin unique, porté par un électron ou un trou. Des progrès technologiques ont permis de réaliser de tels dispositifs, permettant dès 2000, l'étude d'états multichargés dans des anneaux InAs/GaAs [136].

La possibilité de contrôler le spin dans les boîtes quantiques en fait de bons candidats pour l'utilisation en tant de qubits, ou pour le stockage et la manipulation de l'information. Pour faire des structures logiques (quantum gates), il est nécessaire de coupler ces qubits entre eux; la structure élémentaire est une "molécule" (QDM) - deux boîtes quantiques alignées horizontalement ou verticalement. Les états complexes dans de telles structures peuvent être obtenus avec des charges supplémentaires introduites par effet tunnel, et le nombre des porteurs peut être contrôlé à l'aide d'une tension électrique [137].

Pour les boîtes InAs/GaAs auto-assemblées, la méthode communément utilisée est de répéter la croissance d'une deuxième couche de boîte au-dessus de la première. L'alignement est obtenu grâce à la contrainte mécanique résiduelle sentie par les couches de la deuxième famille des boîtes. Pour les boîtes GaAs/AlGaAs à base de nanotrous, les QDM sont obtenues de façon directe, car l'alignement des boîtes est assuré par le fait que les deux boîtes se trouvent dans le même nanotrou.

Rappelons maintenant le principe de chargement de boîtes quantiques dans une structure Schottky.

Dans ce travail de thèse, nous utilisons une structure de type n-i-Schottky, qui permet de charger des boîtes avec une charge négative. Le nombre de charges peut être contrôlé par la tension électrique appliquée entre la couche dopée n+ et le contact Schottky. Cette tension crée un champ électrique dont la valeur dépend de l'épaisseur de la structure. L'efficacité de chargement dépend de la distance entre le contact arrière (dans la couche dopée) et le plan des boîtes. Le ratio de cette distance par l'épaisseur totale de la structure (entre les deux contacts) fixe un paramètre important, qui contrôle la vitesse d'alignement des niveaux d'énergie des boîtes. Si le niveau de Fermi est aligné avec un des niveaux non-occupés, un électron peut tunneler dans la boîte. Inversement, si un électron se trouve à plus haute énergie que le niveau de Fermi de la couche dopée, cet électron peut s'échapper de la boîte, chargeant cette boîte positivement (si, par exemple, il existait une paire électron-trou photocréée).

Pour analyser la structure de charges dans les boîtes quantiques, des expériences de microphotoluminescence sont effectuées. L'excitation optique crée des paires électron-trou dans les boîtes, et l'analyse de la photoluminescence donne une information sur l'état

de charge des boîtes. Pour illustrer le principe de ces mesures, nous allons utiliser des travaux précédents, présents dans la littérature, sur les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs relativement bien étudiées.

## 6.2 Spectroscopie des états chargés dans une boîte quantique unique

### 6.2.1 Cas des boîtes InAs/GaAs

Dans les boîtes InAs/GaAs, les états de  $X^{3-}$  à  $X^+$  peuvent être créés. [138–141]. La figure 6.2.1 montre des résultats obtenus par Ware et al. [139] sur une boîte quantique InAs/GaAs auto-assemblée dans une structure n-i Schottky. Sur cette figure, nous voyons l'évolution de la structure des raies en fonction de la tension appliquée.

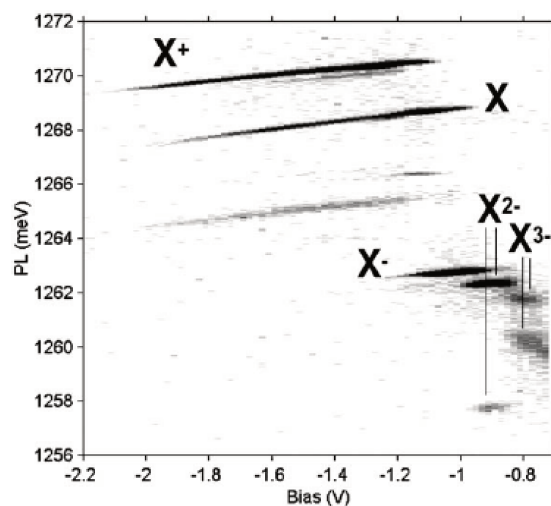


Figure 6.2.1: Spectre en code couleur de photoluminescence d'une boîte quantique InAs/GaAs en fonction de la tension appliquée. [139]

Pour les tensions négatives fortes ( $< -2,2V$ ), aucune luminescence n'est observée, car la probabilité du processus tunnel est très haute, tous les électrons s'échappent de la boîte, ce qui se traduit par l'absence de paires électron-trou susceptibles de se recombiner radiativement.

Pour les tensions négatives moins fortes ( $-2,2/-2,1 V$ ), on commence à voir des raies de photoluminescence. Les électrons peuvent toujours s'échapper de la boîte, mais avec une probabilité réduite. Dans cette région de tension, la luminescence du trion positif  $X^+$  est observée: une première paire électron-trou est créée; l'électron quitte la boîte par effet tunnel, en laissant une charge positive, qui va permettre la création d'un trion après capture d'une seconde paire électron-trou.

Ensuite, l'augmentation de la tension diminue encore la probabilité du processus tunnel, et une raie associée à l'exciton neutre  $X^0$  apparaît vers -2,1 V. Le nombre d'électrons qui s'échappent de la boîte et le nombre d'électrons qui recombinent avec un trou sans s'échapper, définit les intensités relatives des raies associées à  $X^+$  et à  $X^0$ ; dans la région de -1,8 à -1,1 V, ces états peuvent être observés simultanément.

La luminescence de l'état  $X^+$  est ensuite supprimée à -1,1 V, le mécanisme piégeant des charges cessant d'être efficace. Dans le même temps, nous voyons une raie qui apparaît à -1,2 V à plus basse énergie. Cette raie est associée au trion négatif  $X^-$ . Nous voyons que entre -1,2 et -1 V, trois raies sont observées. Cette région correspond à l'alignement du potentiel chimique de la couche dopée avec un état de la bande de conduction dans la boîte. En conséquence, des processus tunnel dans deux directions sont autorisés, selon la présence d'une charge dans la boîte et/ou d'une paire électron-trou. Une excitation lumineuse plus forte peut faire apparaître la luminescence du biexciton  $XX$  en même temps.

A ce stade, l'augmentation de la tension interdit l'échappement des électrons de la boîte, et des structures excitoniques multichargées négatives ( $X^{2-}$ ,  $X^{3-}$ ) peuvent être observées, créées par des paires électron-trou photoexcitées et des électrons introduits via la zone dopée par effet tunnel.

### 6.2.2 Cas des boîtes GaAs/AlGaAs

Sur la figure 6.2.2, nous voyons un résultat, pour une boîte AlGaAs/GaAs de type droplet sur un substrat [111], obtenu par Bouet et al. [142]. Comme sur la figure 6.2.1, nous voyons l'évolution de la structure des raies de photoluminescence en fonction de la tension appliquée. La même logique peut être utilisée pour décrire ce spectre. Pour les boîtes GaAs/AlGaAs de type droplet les structures de  $X^{3-}$  à  $X^{2+}$  ont été rapportées [142, 143].

Un point particulièrement intéressant, dans le cadre de cette étude, est la différence des énergies de liaison des états excitoniques entre les boîtes InAs/GaAs autoassemblées et les boîtes GaAs/AlGaAs de type droplet. Pour les boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs, la raie du trion positif  $X^+$  peut se trouver plus haut en énergie sur les spectres de photoluminescence, avec des énergies de liaison typiques d'environ -1/-2 meV. La raie du trion négatif est observée plus bas en énergie, et l'énergie de liaison correspondante est d'environ 4-6 meV [144, 145].

Sur la figure 6.2.2, obtenu pour des boîtes GaAs/AlGaAs de type droplet sur un substrat [111], nous voyons que les énergies de liaison sont 4 et 6 meV pour les états  $X^+$  et  $X^-$  respectivement.

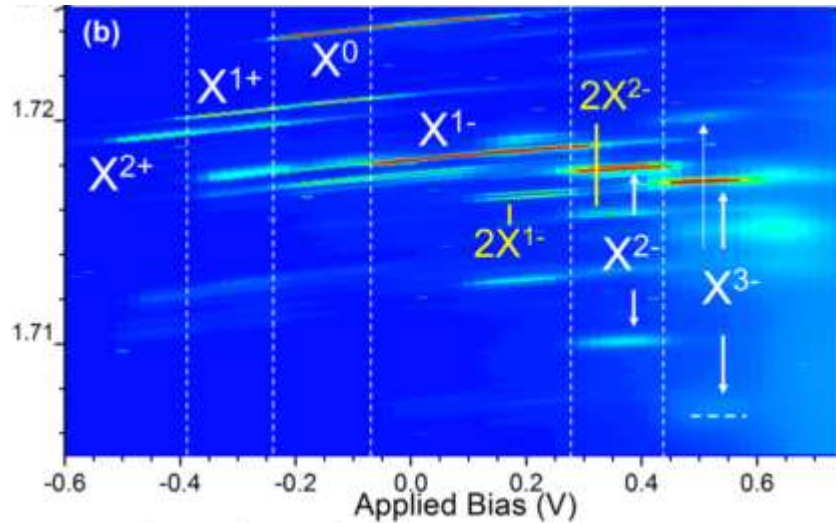


Figure 6.2.2: Spectre en code couleur de photoluminescence obtenu par Bouet et al [142] pour une boîte quantique GaAs/AlGaAs droplet en fonction de la tension appliquée.

Cette différence est la signature que l'interaction répulsive entre les trous est plus forte que l'interaction attractive électron-trou dans les boîtes InAs, contrairement aux boîtes GaAs.

Pour les boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous, des mesures de photoluminescence sur des boîtes uniques non insérées dans une structure n-i Schottky, ont montré que les deux raies  $X^+$  et  $X^-$  se trouvent à plus basse énergie par rapport à l'exciton neutre, avec les énergies de liaison 3 et 5 meV respectivement [63]. Ce résultat est différent des valeurs typiques pour les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs que nous venons de discuter, mais est en bon accord avec des résultats obtenus pour des boîtes GaAs/AlGaAs droplets.

### Conclusion intermédiaire

Nous avons présenté des études précédentes sur la spectroscopie des états chargés dans les boîtes quantiques uniques InAs/GaAs auto-assemblées et les boîtes GaAs/AlGaAs. Nous allons utiliser ces résultats comme des repères pour nos mesures, ce qui nous permettra d'identifier des raies et de comparer nos résultats avec ceux effectués précédemment.

### 6.2.3 Résultats expérimentaux: boîtes uniques dans une structure n-i Schottky

Dans un premier temps, nous nous sommes donc intéressés à un système relativement simple: un échantillon avec des boîtes uniques GaAs/AlGaAs dans des nanotrous. Le



but de cette étude était d'observer et contrôler le chargement des boîtes et d'identifier les raies sur les spectres de photoluminescence.

### Paramètres de l'échantillon

La structure de l'échantillon étudié est présentée dans le tableau suivant:

Couche	Composition	épaisseur nominale
Buffer	$GaAs$	250 nm
Doped contact layer	Si: $GaAs$ $2e18\text{ cm}^{-3}$	250 nm
Graded doped contact layer	Si: $Al_xGa_{1-x}As$ ( $0.05 < x < 0.43$ )	250 nm
Tunnel barrier	$Al_{0.43}Ga_{0.57}As$	25 nm
Nanohole formation	$Al$	2 monocouches
Quantum dot	$GaAs$	3 nm
Top barrier	$Al_{0.33}Ga_{0.67}As$	100 nm
Top barrier	$Al_{0.33}Ga_{0.67}As - Al_{0.43}Ga_{0.57}As$	16 nm
Confining layer	$Al_{0.43}Ga_{0.57}As$	21 nm
Cap	$GaAs$	10 nm

Table 6.1: Paramètres de l'échantillon avec des boîtes quantiques uniques  $GaAs/AlGaAs$  dans une structure  $n-i$  Schottky étudié dans ce chapitre.

Dans cette structure, en l'absence de champ électrique appliqué, on prévoit que les boîtes sont chargées négativement à cause de la couche dopée  $Al_xGa_{1-x}As$ . Pour vider les boîtes des électrons, il faut appliquer une tension négative, d'autant plus élevée que l'on souhaite obtenir des états chargés positivement.

Pour ces paramètres de croissance, l'épaisseur finale des boîtes est d'environ 5-7 nm, et la luminescence est prévue vers 1,59 eV (780 nm). La figure 6.2.3 présente trois spectres en code couleur de photoluminescence en fonction de la tension appliquée. Ces spectres montrent des structures des raie similaires, obtenues de manière systématique sur différentes boîtes. L'excitation lumineuse est effectuée avec une diode laser à 532 nm, la puissance d'excitation enregistrée devant la fenêtre d'entrée du cryostat est  $150\ \mu W$ .

Nous observons la photoluminescence vers 1,62 eV (760 nm) ce qui indique que l'épaisseur des boîtes est plutôt petite. Le signal des boîtes est observé pour les tensions entre -1.5 et -0.3 V. Nous n'avons pas pu appliquer des tensions négatives plus fortes à cause des valeurs de courant de fuite très élevées et du risque d'abîmer l'échantillon.

La résolution spectrale pour cette série de mesures était  $100\ \mu eV$ . Considérant nos résultats présentés dans les chapitres 3-5, sur d'autres échantillons avec des boîtes  $GaAs/AlGaAs$ , le splitting de structure fine est typiquement de l'ordre de  $50\ \mu eV$ ; cette

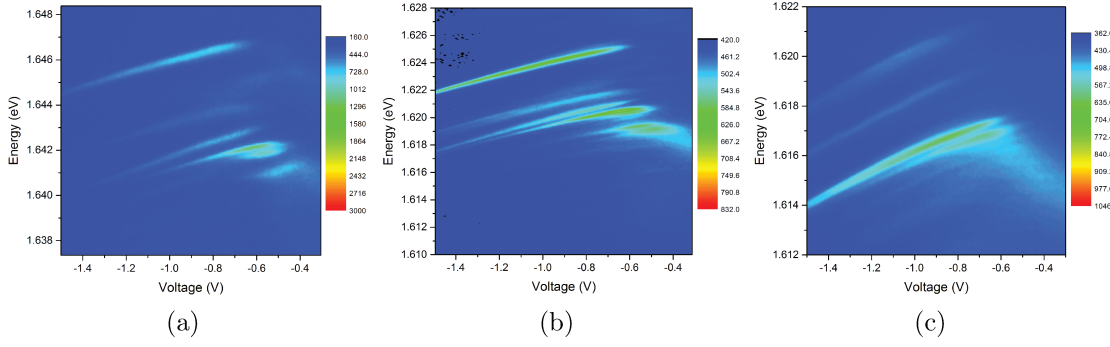


Figure 6.2.3: Trois spectres de photoluminescence en fonction de la tension électrique appliquée, pour trois boîtes différentes ( $\lambda_{exc} = 532nm$ ,  $P = 150\mu W$ ).

résolution n'est donc pas suffisante. Pour identifier les raies observées sur ces spectre, nous allons considérer leur structure et les énergies de liaison associées, en comparant avec la littérature [63].

Sur la figure 6.2.3 nous associons la raie à la plus haute énergie à l'exciton neutre  $X^0$ . L'augmentation de la tension électrique abaisse la structure des bandes et augmente la probabilité de chargement par des électrons. Vers -1,4 V, trois autres raies apparaissent, et leur intensité augmente avec l'augmentation de la tension. Considérant l'écart en énergie entre ces raies et la raie associée à l'exciton neutre  $X^0$  (3 meV, 4,5 et 5 meV) et comparant avec les résultats dans la référence [63], nous associons ces raies aux excitons chargés, et en particulier à  $X^-$ ,  $X^{2-}$  et  $X^{3-}$ .

On constate une grande similitude avec la figure 6.2.1, dans la gamme -1,2/-0,8 V, et la figure 6.2.2, dans la gamme 0/0,6 V. Il apparaît successivement des états chargés puis multichargés négativement. L'élargissement des raies, lorsque la tension augmente, est associée à une augmentation du taux de tunneling des charges; puis à l'absence de photoluminescence lorsque le courant de fuite devient significatif (cf. chapitre 2).

A noter que la barrière tunnel (25 nm de  $Al_{0.43}Ga_{0.57}As$ ) semble être suffisamment haute pour empêcher la création de trions positifs.

Cette information sur la structure des raies pour les boîtes uniques va nous aider à expliquer un système plus complexe - deux boîtes quantiques couplées (QDM) - que nous allons décrire dans les sections suivantes.

Maintenant nous allons nous intéresser à l'influence de la puissance d'excitation sur les spectres en fonction de la tension. La figure 6.2.4 présente trois spectres de la même boîte pour trois puissances d'excitation différentes.

Le changement de puissance d'excitation a comme effet principal le décalage du spectre selon l'axe de la tension, ce qui indique une accumulation de charge dans la

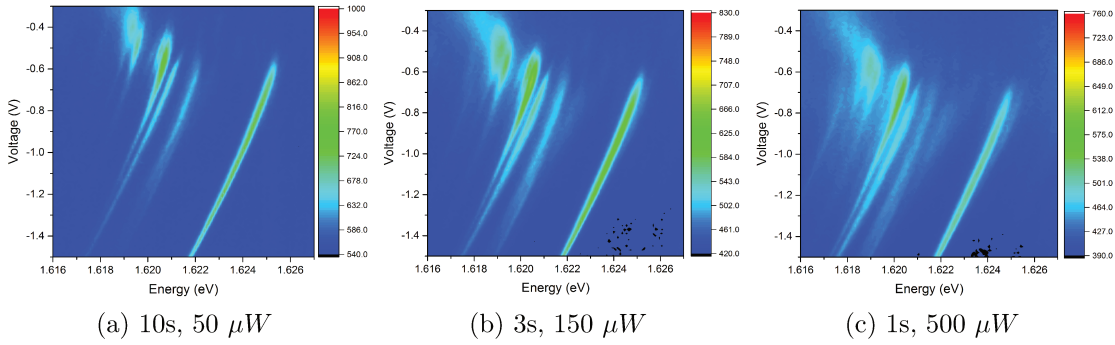


Figure 6.2.4: Spectres de photoluminescence en fonction de la tension électrique appliquée, pour la même boîte et trois puissances d'excitation différentes.

structure, en particulier de trous au voisinage de la surface. Nous observons un décalage vertical d'environ 0.2 V pour les spectres obtenus avec des puissances d'excitation de 50 et 500  $\mu W$ .

#### 6.2.4 Système à deux boîtes quantiques (QDM) dans une structure Schottky

Dans cette partie, nous allons voir les résultats des études sur les QDM de boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage des nanotrous, alignées verticalement. La description détaillée de la méthode de croissance des QDM est donnée dans le chapitre 2. Cette structure est similaire à la structure avec une boîte, mais cette fois la première couche dopée GaAs est suivie par une couche GaAs isolante et une barrière et puis la procédure de formation de boîtes est répétée deux fois avec une barrière supplémentaire AlGaAs entre les deux couches de boîtes GaAs.

Si on applique un champ électrique à la structure, il est possible d'aligner des niveaux d'énergie entre les deux boîtes. Ceci permet aux électrons et aux trous de tunneler d'une boîte à l'autre. En conséquence, ces électrons et trous deviennent délocalisés, et on peut obtenir des états excitoniques indirects, quand l'électron et le trou se trouvent dans des boîtes différentes. Les excitons formés par un électron et un trou dans la même boîte s'appellent les excitons directs.

La probabilité des effets tunnel dépend de l'épaisseur de la barrière entre les boîtes, qui doit être suffisamment fine pour permettre aux électrons et/ou aux trous de tunneler d'une boîte à l'autre. Pour les boîtes InAs/GaAs, il a été montré que le couplage diminue fortement pour les barrières à partir de 6 nm - si la barrière est trop épaisse, les orbitales moléculaires dans les QDM restent localisées [146].

Le confinement de chaque boîte dans un nanotrou peut être contrôlé indépendamment

pendant la croissance. Dans une QDM, les paramètres des boîtes peuvent être accordés pour favoriser l'alignement des niveaux de la bande de valence ou des états de la bande de conduction, pour étudier des états indirects avec des trous ou des électrons délocalisés, respectivement.

### Anticroisement des excitons dans une QDM

Dans le paragraphe précédent, nous avons discuté que pour une QDM dans une structure Schottky, il est possible de délocaliser des électrons ou des trous en alignant les niveaux d'énergie correspondants des boîtes.

Tout d'abord, nous allons décrire une notation couramment utilisée pour les états excitoniques dans une QDM. Quatre nombres sont utilisés, qui donnent le nombre d'électrons et de trous dans le système. Ces nombres forment une matrice 2x2. L'absence de porteurs s'écrit dans cette notation comme  $\begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$ . Un exciton direct dans la première boîte s'écrit  $\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$ , et un exciton indirect avec un électron dans la première boîte et un trou dans la deuxième boîte s'écrit  $\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ . Pour montrer l'origine des électrons et des trous qui recombinent radiativement, deux éléments dans ces matrices sont soulignés quand on parle de raies de photoluminescence.

La figure 6.2.5 réalisée par A. Boyer de la Giroday et al. [147] schématise les deux anticroisements possibles pour un exciton neutre: l'anticroisement des électrons et des trous.

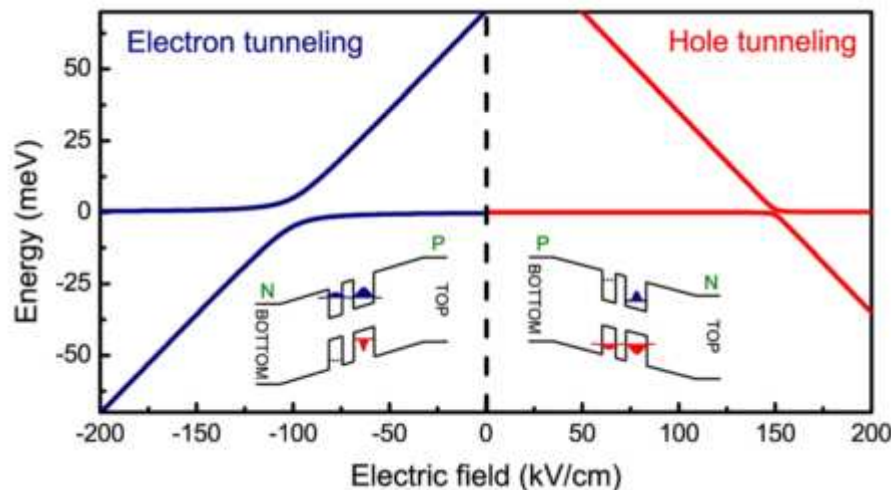


Figure 6.2.5: Schéma des anticroisements des électrons et des trous dans une QDM [147].

Les anticroisements associés aux processus tunnels des électrons sont plus prononcés que les anticroisements associés aux processus tunnels des trous, ce qui peut être expliqué par la différence de leurs masses effectives.

Maintenant, intéressons-nous à comment se manifestent ces transitions sur les spectres de photoluminescence. L'alignement des niveaux d'énergie de deux boîtes dans une QDM fait apparaître des anticroisements sur les spectres de photoluminescence en fonction de la tension appliquée [148–152]. L'origine de ce comportement est le principe de Pauli qui interdit l'existence des deux particules dans un même état, et au point de croisement possible des branches associées aux excitons directs et indirects, ces branches se repoussent. Scheibner et al [153] présentent un spectre de photoluminescence en fonction du champ électrique appliqué d'une QDM de boîtes auto-assemblées InAs/GaAs (figure 6.2.6). Les paramètres des deux boîtes sont: 2.9 nm en hauteur et 14.6 nm en diamètre pour la boîte B (bottom), et 2.1 nm en hauteur et 17.9 nm en diamètre pour la boîte T (top). Les deux boîtes sont séparées par une barrière GaAs d'environ 6.6 nm.

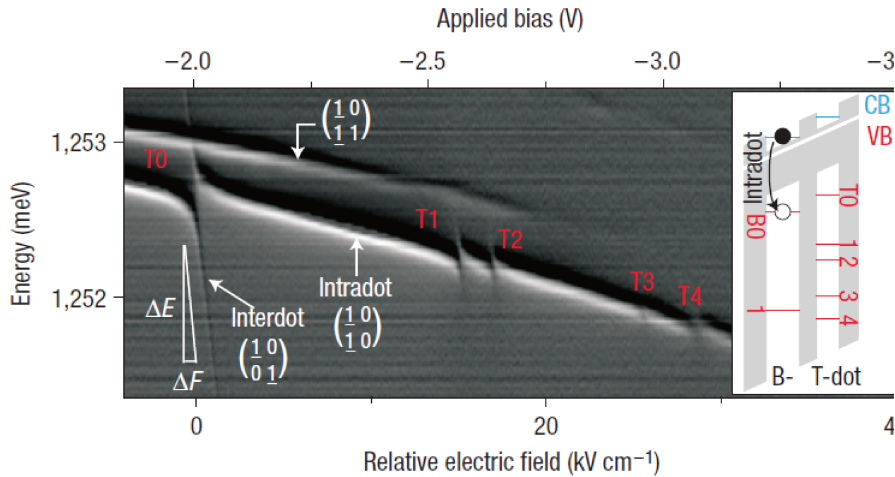


Figure 6.2.6: Spectre de photoluminescence, qui présente la spectroscopie des niveaux d'énergie (LACS), obtenu par Scheibner et al [153] pour une QDM de deux boîtes auto-assemblées InAs/GaAs, alignées verticalement dans une structure *n-i* Schottky. À gauche - spectre de photoluminescence en fonction du champ électrique appliqué; à droite - représentation schématique des niveaux d'énergie dans ce système.

L'identification des raies associées aux excitons directs et indirects est couramment faite à l'aide de la force de l'effet Stark. Les états indirects présentent un Stark shift beaucoup plus fort que les états directs, à cause de la différence en moment des dipôles des excitons. Cette différence provient de la différence en rayons des excitons directs et indirects, car pour ces derniers, l'électron et le trou sont séparés par la barrière entre les deux boîtes de la QDM.

Sur la figure 6.2.6, nous voyons une série d'anticroisements pour la raie associée à l'état  $\left(\frac{1}{1} \frac{0}{0}\right)$ . Le premier anticroisement est associé à l'exciton indirect  $\left(\frac{1}{0} \frac{0}{1}\right)$  formé par un exciton dans la première boîte et un trou dans l'état fondamental dans la deuxième boîte. Les autres anticroisements sont associés aux niveaux excités de la boîte T (anticroisement du niveau fondamental de la boîte B avec les états excités notés  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$  et  $T_4$  sur le

schéma de droite, figure 6.2.6). Une raie associée à l'état  $\left(\frac{1}{1} \begin{smallmatrix} 0 \\ 1 \end{smallmatrix}\right)$ , qui correspond à l'exciton direct dans la boîte B en présence d'un trou dans la boîte T, est observée au-dessus de la raie associée à l'exciton direct  $\left(\frac{1}{1} \begin{smallmatrix} 0 \\ 0 \end{smallmatrix}\right)$ .

Scheibner et al [153] présentent aussi un spectre de photoluminescence où des complexes multichargés peuvent être observés. Ce spectre est présenté sur la figure 6.2.7.

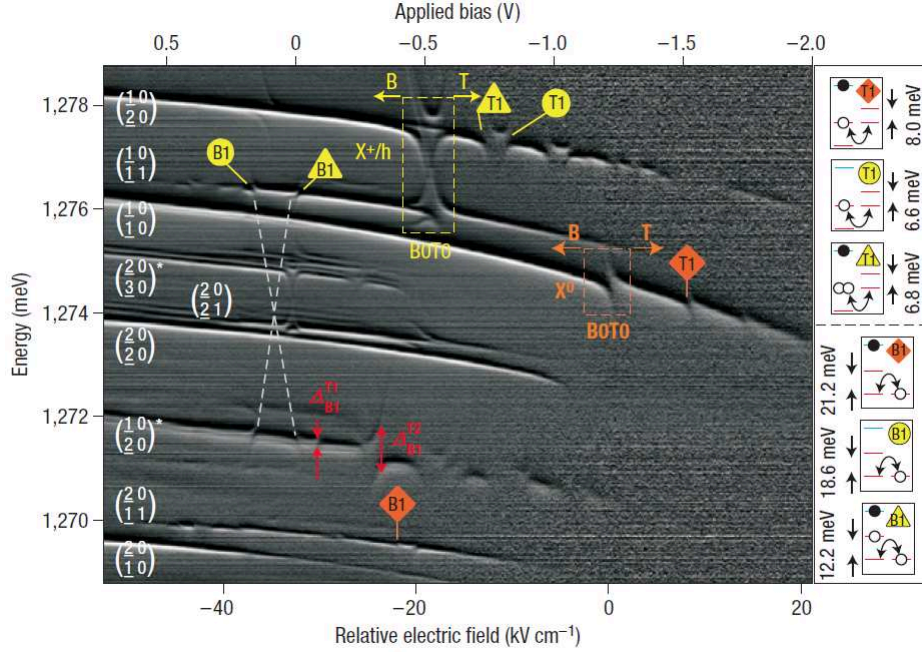


Figure 6.2.7: Spectroscopie des niveaux d'énergie (LACS), obtenu par Scheibner et al [153] pour une QDM de deux boîtes auto-assemblées InAs/GaAs alignées verticalement dans une structure n-i Schottky. Le spectre de photoluminescence en fonction de la tension appliquée est accompagné par une représentation schématique des complexes chargés dans ce système.

Nous ne commenterons pas toutes les raies, mais à nouveau, nous voyons que l'alignement des niveaux excités de deux boîtes crée aussi des anticroisements sur les spectres de photoluminescence. En raison d'états chargés ou multichargés, le spectre peut devenir complexe à analyser de part la présence d'un nombre élevé de raies observées.

## 6.3 Résultats expérimentaux: QDM dans une structure n-i Schottky

### 6.3.1 Paramètres de l'échantillon

La structure de l'échantillon étudié est présentée dans le tableau suivant:

Couche	Composition	épaisseur nominale
Buffer	$GaAs$	300 nm
Dopant layer	Si: $GaAs$ $2e18\text{ cm}^{-3}$	400 nm
Intrinsic spacer	$GaAs$	50 nm
Nanohole formation	$Ga$	X monocouches
Recrystallization	$As$	-
Bottom barrier	$Al_{0.45}Ga_{0.55}As$	7 nm
Lower dot	$GaAs$	0.6 nm
Barrier	$Al_{0.45}Ga_{0.55}As$	4 nm
Top dot	$GaAs$	0.65 nm
Recrystallization	$As$	-
Top barrier	$Al_{0.34}Ga_{0.66}As$	99 nm
Cap	$GaAs$	10 nm

Table 6.2: Paramètres de l'échantillon avec des QDM  $GaAs/AlGaAs$  dans une structure n-i Schottky étudié dans ce chapitre.

L'épaisseur previsionnelle des boîtes est 3-4 nm pour la première famille et 2-3 nm pour la deuxième famille. Avec ces caractéristiques, la luminescence est prévue pour ces deux familles des boîtes à 740 nm et 680 nm, respectivement.

La figure 6.3.1 montre le diagramme des bandes pour le système étudié - deux boîtes quantiques alignées verticalement dans un nanotrou. La barre sous le diagramme montre les matériaux correspondants: la première couche de  $GaAs$  dopé n+ est montrée en vert, les autres couches de  $GaAs$  en bleu, et en rouge, ce sont les couches de  $AlGaAs$  de concentrations différentes -  $Al_{0.45}Ga_{0.55}As$  et  $Al_{0.34}Ga_{0.55}As$ .

Sans tension appliquée, les bandes sont inclinées; cette inclinaison est définie par l'épaisseur  $L$  de la structure et la tension dans le contact Schottky, qui est d'environ 0,75 V pour une jonction  $GaAs-Cr$  [154], mais peut varier à cause de défauts de surface et des états surfaciques. Pour une tension de 0,75 V le champ intrinsèque est d'environ 44 kV/cm sans tension externe appliquée. Le décalage relatif en énergie induit dans les deux boîtes peut être calculé comme  $\delta E = Fd$ , où  $F$  est la valeur de champ et  $d$  est la distance entre les centres des boîtes. L'application d'une tension externe va changer ce décalage en énergie, d'une quantité  $\frac{Vd}{L}$ . Pour une distance entre les boîtes de 7 nm, cette valeur est  $\sim 4$  meV par 0,1 V appliqué.

### 6.3.2 Caractérisation de l'échantillon (PL)

Maintenant, nous allons présenter les résultats expérimentaux. La première étape de l'étude était de voir si la luminescence correspondait aux valeurs envisagées. Nous avons fait des études sur un échantillon non-traité. Cela a deux effets principaux. Première-

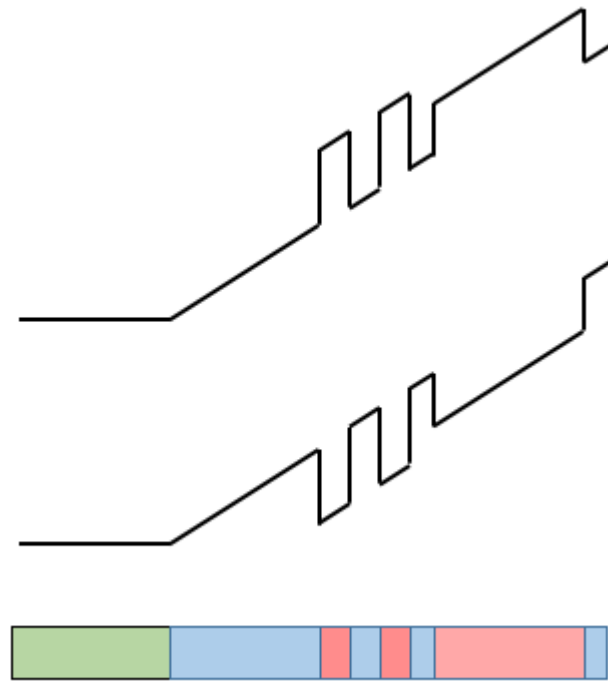


Figure 6.3.1: Diagramme des bandes de la structure n-i-Schottky pour le système de deux boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Les couleurs correspondent à: vert - n+ GaAs, bleu - i-GaAs, rouge - AlGaAs.

ment, une différence remarquable entre échantillon traité et non-traité est l'absence de couche de Cr sur la surface. La couche de 5 à 10 nm que nous utilisons pour faire un contact en face avant de la structure Schottky absorbe une partie non-négligeable des photons d'excitation ainsi que du signal. L'absence de cette couche augmente donc l'efficacité d'excitation et de détection. Deuxièmement, nous ne pouvons pas changer la tension effective appliquée à la structure. Cependant, nous avons une méthode indirecte pour changer le champ effectif à l'aide de la puissance d'excitation, comme montré dans la section précédente avec nos résultats sur les boîtes uniques. L'augmentation de la puissance d'excitation provoque une accumulation de charges dans la structure. Ces charges accumulées créent leur propre champ local qui compense le champ intrinsèque.

L'excitation est faite avec une diode émettant à 532 nm. Une compilation des spectres pris sur cet échantillon est montrée sur la figure 6.3.2. 6 spectres représentent 6 points différents pour deux valeurs de puissance (66 et 140 nW). Un spectre (en bleu) est pris sur une large gamme et permet d'observer l'émission du GaAs et des barrières.

Entre le signal de GaAs vers 1,5 eV et le signal de AlGaAs vers 1,95 eV, nous observons le signal de deux familles de boîtes quantiques. Vers 1,82-1,86 eV (ou 670-680 nm), nous voyons la première famille de boîtes. Nous observons la deuxième famille dans la région spectrale comprise entre 1,66 et 1,72 eV (ou 725 et 740 nm) (selon la zone sondée). Nous



attribuons la différence en énergie d'émission pour la deuxième famille à des fluctuations de l'épaisseur des boîtes. Ceci peut également être observé pour la première famille. Notons que pour cette série nous pouvons voir une certaine corrélation des résultats pour les spectres 1-3 et les spectres 4-6, pour lesquelles l'énergie d'émission de la famille des boîtes à plus basse énergie est presque identique. Ceci est la conséquence du fait que ces spectres ont été enregistrés avec des déplacements latéraux assez petits ( $\sim 10\mu m$ ) par séries de 3 points. Après la première série, un grand déplacement (quelques centaines de  $\mu m$ ) a été fait, avant d'enregistrer une nouvelle série de trois points. Ceci indique que, étant localement homogène, l'épaisseur des boîtes change à plus grande échelle.

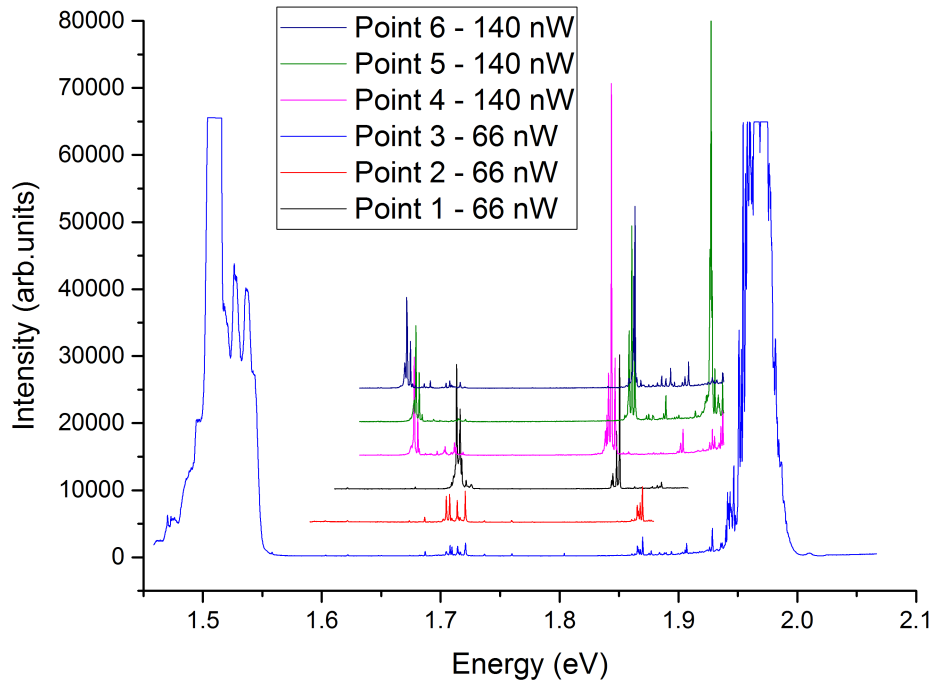


Figure 6.3.2: Compilation de spectres de photoluminescence pris sur un morceau d'échantillon non traité (sans contacts).

Avant de présenter et discuter les résultats de photoluminescence des QDM avec contrôle de charge, nous allons faire une estimation des niveaux d'énergies des électrons et des trous dans ces structures, à partir des énergies d'émission mesurées (environ 1,69 eV et 1,84 eV) et dans le cadre d'un modèle à deux puits quantiques.

Les masses de l'électron et du trou lourd, selon l'axe de croissance sont choisies égales à  $m_e = 0,067m_0$  et  $m_h = 0,35m_0$  ( $m_0$  est la masse de l'électron libre) [23]. Le rapport des offsets de bande est fixé à 70:30. Les concentrations en Aluminium des barrières sont fixées à leur valeur nominale. On obtient alors deux puits: le premier, simulant la boîte inférieure, de largeur 3,8 nm, entre deux barrières de  $Al_{0.45}Ga_{0.55}As$ ; le second, de largeur 1,8 nm, entre une barrière de  $Al_{0.45}Ga_{0.55}As$  et une barrière de  $Al_{0.34}Ga_{0.66}As$ .

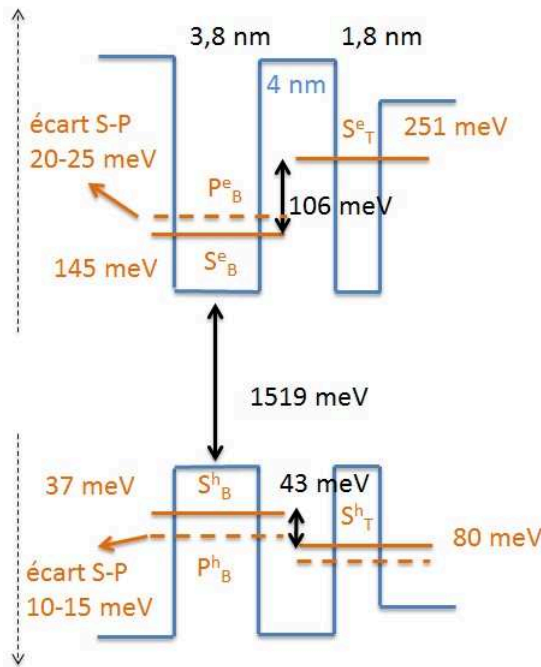


Figure 6.3.3: Structure de bandes pour deux puits quantiques dans le régime “flat-band” (modélisation). Les écarts entre les niveaux S des électrons et de trous sont présentés. Les états P sont schématisés pour une QDM avec les mêmes paramètres de confinement.

La figure 6.3.3 montre la structure de bandes correspondantes, ainsi que les résultats de la modélisation des états S. La position des états P, induits par le confinement latéral, est également schématisée.

L'écart entre les états S des électrons dans ces deux boîtes est 106 meV. Pour aligner ces états dans notre échantillon, il faudrait appliquer une tension positive d'environ 2 V au-delà du régime “flat-band”. Cette configuration n'est donc pas accessible. Considérant l'écart en énergie entre les états S et P des électrons, 20-25 meV, et des trous, 10-15 meV, (en s'appuyant sur les résultats de la référence [65]), nous pouvons aussi conclure qu'il n'est pas possible d'aligner des états P des électrons de la première boîte B avec les états S de la deuxième boîte T).

Considérons les états S de trou, pour lesquels l'écart en énergie est plus faible. Les centres des puits étant séparés d'environ 7 nm, un croisement entre ces états nécessite un champ électrique d'environ 60 kV/cm. A l'échelle de la structure totale (170 nm), ceci correspond à une tension de 1 V. Bien qu'un peu grande, cette valeur est comparable à la tension résiduelle attendue (0.5 – 0.7 V).

De plus, notre modèle, basé sur des puits quantiques, permet une analyse semi-quantitative, mais néglige l'effet du confinement latéral (une étude théorique et numérique plus complexe serait nécessaire). Le confinement selon l'axe de croissance favorise fortement les états électroniques, de masse faible, dont l'énergie de confinement est 4 fois

supérieure à celle des trous. Dans le plan, électron et trou ont des masses comparables ( $m_e = 0,067m_0$  et  $m_h = 0,1m_0$ ) et des énergies de confinement proches. Une prise en compte exacte de ce confinement latéral devrait s'accompagner d'une diminution des énergies des électrons (insuffisamment pour permettre un croisement) et une augmentation de celle des trous (à énergie d'émission constante). Il est à noter que cette correction sera d'autant plus forte que la dimension latérale de la boîte sera faible, ce qui est le cas de la boîte inférieure B, située au fond du trou, et de dimension plus faible que la boîte supérieure T. En conclusion, une diminution de l'écart entre les états de trous et une valeur inférieure à 43 meV est attendue.

### 6.3.3 Evolution des états chargés avec la tension électrique

Nous passons maintenant aux études de cet échantillon en champ électrique. Pour effectuer cette expérience, nous avons fait des contacts comme décrit dans le chapitre 2. Nous avons réalisé des masques en or avec des trous de 2, 3 et 4  $\mu m$  en diamètre. Nous varions la tension entre deux valeurs qui correspondent à une augmentation rapide du courant. Pour notre échantillon, c'est la région entre  $-1V$  et  $0,6V$ . Nous ne voyons pas de signal pour des tensions inférieures à  $0V$ . La valeur maximale est limitée par le potentiel du contact Schottky, où nous atteignons le régime "flat-band" et des courants élevés. Cette valeur est d'environ 0,6 V pour nous. Nous présenterons donc les résultats pour les tensions  $0,1 - 0,6V$ . Pour chaque valeur de tension, nous faisons une acquisition de la luminescence totale. Le pas varie de 0,001 V (600 points dans la région d'intérêt) à 0,01 V (60 points).

#### Influence de la longueur d'onde d'excitation

L'énergie d'excitation définit où les paires électron-trous sont créées, ainsi que l'efficacité de cette excitation et du piégeage dans les boîtes quantiques. Nous avons deux sources d'excitation pendant ces études: une diode à 532 nm (2,33 eV) et une diode à 638 nm (1,94 eV). La figure 6.3.4 montre deux spectres de photoluminescence pour la même ouverture de 2  $\mu m$  en diamètre.

Pour avoir la même intensité de photoluminescence des raies, il nous a fallu exciter beaucoup plus fort avec l'excitation en rouge (un facteur 200). La raison de ceci est le fait que, avec une excitation à 638 nm, nous excitons des paires électron-trou dans les couches de GaAs, et l'efficacité du piégeage est réduite. Dans le cas d'une excitation à 532 nm, nous pouvons créer des paires électron-trou dans la barrière AlGaAs, qui sont ensuite plus facilement piégées dans les boîtes. Ces processus sont schématisés sur la figure 6.3.5

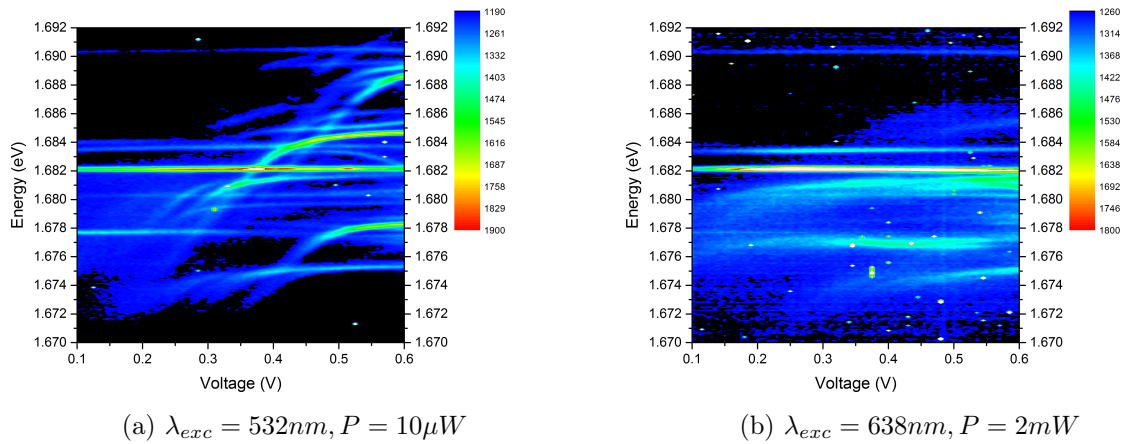


Figure 6.3.4: Spectres de luminescence enregistrés sur un trou de  $2\ \mu m$  en diamètre pour deux longueurs d'onde d'excitation.

où nous avons montré les régions de création de paires électron-trou (électrons et flèches en vert correspond à l'excitation à 532 nm, en rouge - à 638 nm).

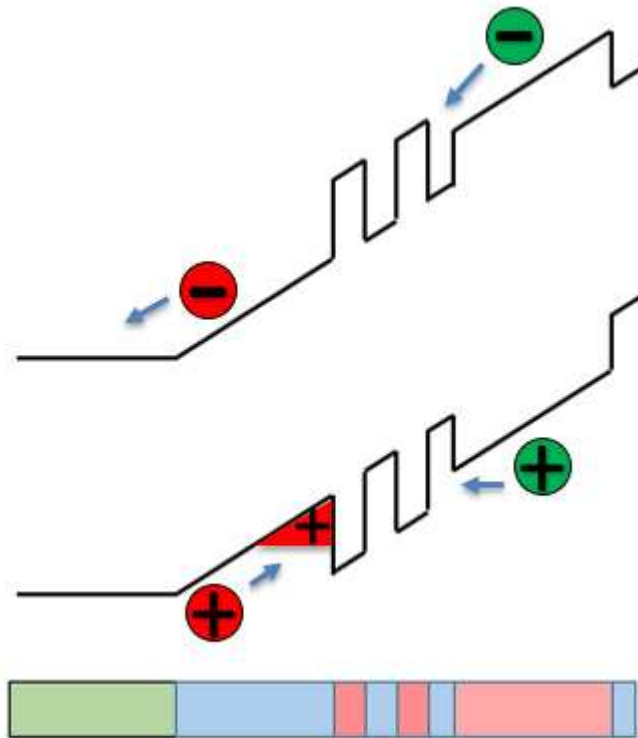


Figure 6.3.5: Schéma d'excitation et de piégeage des électrons et de trous pour une excitation à 532 et 638 nm. Les couleurs sur la diagramme correspondent à: vert - excitation à 532 nm; rouge - excitation à 638 nm. Les couleurs de la barre sous le diagramme correspondent à: vert -  $n+$  GaAs, bleu -  $i$ -GaAs, rouge - AlGaAs.

La puissance d'excitation plus grande, à 638 nm, a une autre conséquence - une accumulation de charges dans le système. Beaucoup de paires électron-trou sont créées,

puis séparées par le champ électrique. Apparemment, ceci crée une zone d'accumulation de gaz de trous dans le GaAs derrière la barrière de AlGaAs des boîtes, un effet similaire à celui discuté par B.Eble [144]. Des charges proches de la barrière relativement fine (7 nm) de AlGaAs causent aussi un élargissement de raies (figure 6.3.4). Ce mécanisme est schématisé sur la figure 6.3.5: les électrons créés dans le GaAs par une excitation à 638 nm ont tendance à migrer vers la région du n-GaAs, et des trous s'accumulent au voisinage de la barrière (zone indiquée par un triangle rouge). Un nombre relativement petit de paires électron-trou peut être absorbé dans la QDM.

Nous pouvons conclure que l'excitation à 532 nm est plus efficace, et pour nous, elle donne de meilleurs résultats, permettant de travailler à faible puissance sans accumulation de charges. Nous l'avons utilisé pour le reste des résultats présentés dans ce chapitre.

### Influence de la taille des ouvertures

Intéressons-nous au nombre de raies/boîtes visibles pour chaque diamètre de l'ouverture. Deux séries, pour des ouvertures différentes, sont montrées sur la figure 6.3.6. Le spectre à gauche correspond à l'ouverture la plus petite, de  $2 \mu m$  en diamètre, et le spectre à droite montre le résultat pour une ouverture plus grande, de  $4 \mu m$  en diamètre.

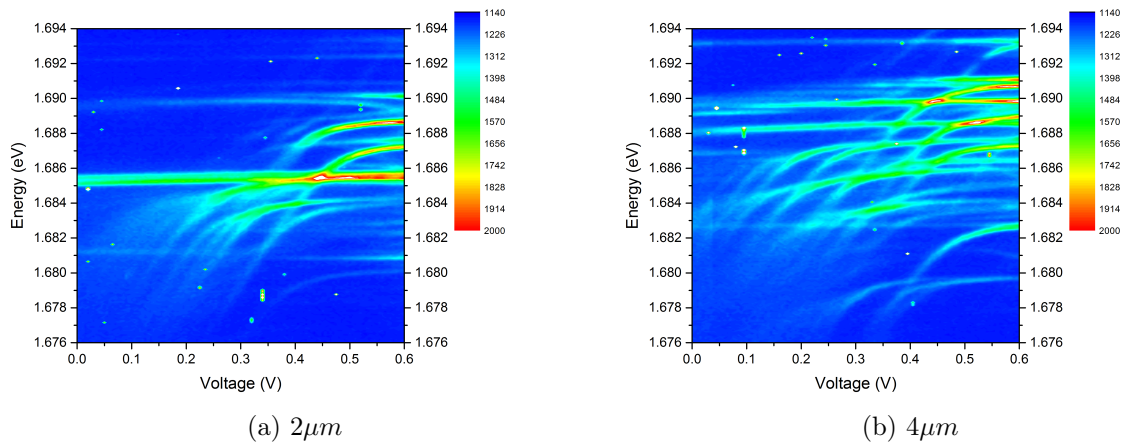


Figure 6.3.6: Spectres de luminescence enregistés sur deux trous de 2 et  $4 \mu m$  en diamètre pour deux longueurs d'onde d'excitation ( $\lambda_{exc} = 532nm$ ,  $P = 10\mu W$ ).

La différence s'exprime en nombre de raies observées sur chaque spectre. Pour estimer le nombre de boîtes observées, considérons le fait que nous observons deux types de raies:

- 1) Celles qui présentent des Stark-shifts faibles pour toute la gamme des tensions et
- 2) Celles qui présentent des Stark-shifts forts. Elles apparaissent typiquement entre 0,1-

0,4 V, et vers 0,6 V le Stark-shift diminue.

Nous reviendrons à cette classification plus tard. Maintenant utilisons cette information pour estimer le nombre de boîtes.

Nous avons fait une statistique sur 20 ouvertures de  $2 \mu m$  en diamètre, et nous voyons typiquement une seule raie forte du groupe 1 (Stark-shift faible). Sur la figure 6.3.6 (a) cette raie se trouve vers 1,6855 eV. Les autres raies présentent des Stark shifts forts pour des valeurs particulières de la tension.

A partir de cette information, nous allons lier le nombre de boîtes (QDM) observées avec le nombre de ces raies. Pour des ouvertures de  $4 \mu m$ , le nombre de ces raies est plus élevé que pour les trous de  $2 \mu m$ . Sur la figure 6.3.6 (b) nous voyons au moins deux raies du groupe 1, à 1,6887 et 1,6898 eV (0,6 V), qui indiquent que nous voyons le signal de plusieurs boîtes (2 dans ce cas). Nous avons donc choisi des ouvertures de  $2 \mu m$  pour isoler le signal des QDM uniques et faciliter l'analyse des spectres. A noter que les images AFM donnent une densité moyenne de nanotrous égale à  $\approx 0,7 \mu m^{-2}$ . Il reste donc possible de trouver deux QDM dans certaines ouvertures de diamètre  $2 \mu m$ .

### Influence de la puissance d'excitation

Un autre outil que nous avons pour contrôler le nombre de raies est la puissance d'excitation. On cherche une puissance d'excitation telle que nous avons un nombre de raies minimal ou proche de minimum. La figure 6.3.7 montre deux spectres pris avec différentes puissances d'excitation (les deux sont obtenus avec l'excitation à 532 nm). A gauche, se trouve le spectre obtenu pour la puissance d'excitation  $10 \mu W$  et un temps d'intégration de 30 s, et à droite, se trouve le spectre obtenu pour la puissance d'excitation  $1 \mu W$  et un temps d'intégration 500 s.

Nous voyons que, à basse puissance, nous pouvons diminuer le nombre de raies. En particulier, la diminution de la puissance a supprimé la raie à 1,6778 eV (0,1 V) sur le spectre de gauche, ainsi que plusieurs raies entre 1,678 et 1,691 eV pour les tensions 0,3-0,6 V.

La puissance d'excitation influence aussi le nombre des porteurs de charge injectés dans la structure. Des charges accumulées peuvent créer un champ local, ce qui va changer le champ effectif total. Les spectres sont ainsi décalés l'un par rapport à l'autre de 0,015 V (pour les spectres de la figure 6.3.7). Cette différence influence des raies via leur Stark-shift: sur la figure 6.3.8 (a) nous pouvons voir des déplacements de raies induits par ce champ effectif. Une série de spectres a été prise pour une même tension appliquée, en fonction de la puissance d'excitation. La première acquisition est faite avec la puissance

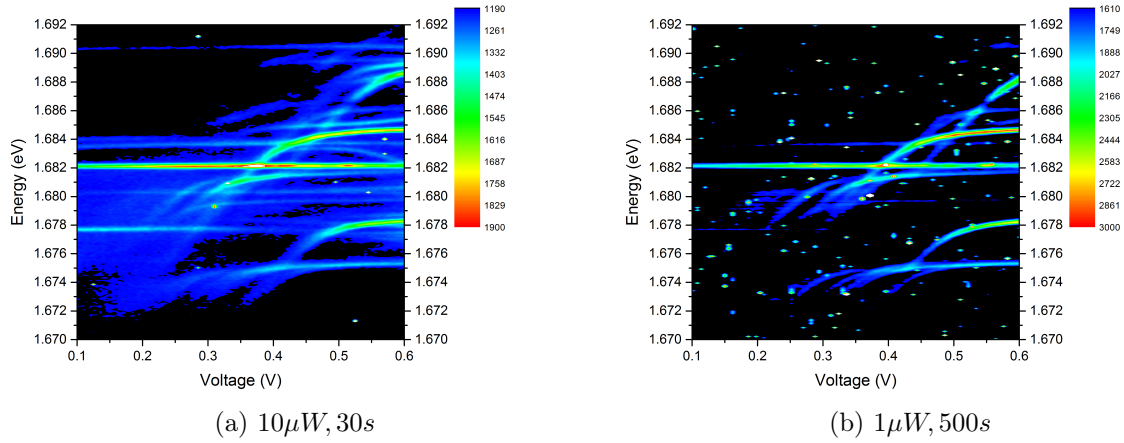


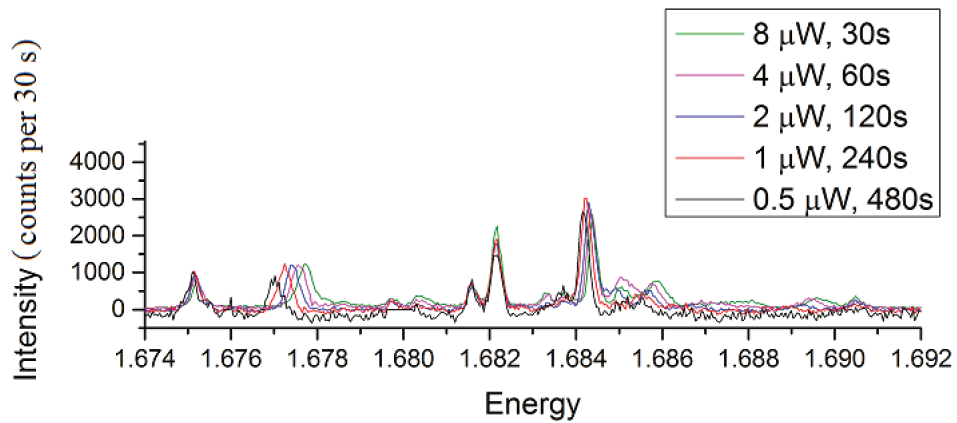
Figure 6.3.7: Spectres de luminescence enregistrés sur un trou de  $2\ \mu m$  en diamètre pour deux puissances d'excitation ( $\lambda_{exc} = 532nm$ ).

d'excitation  $0,5\mu W$  et le temps d'intégration de 480 s. Pour chaque acquisition consécutive, nous augmentons la puissance d'un facteur 2 et diminuons le temps d'intégration d'un facteur 2. Tous les spectres sont pris pour la valeur de tension  $0,5\ V$  correspondent aux spectres montrés sur la figure 6.3.7. La figure 6.3.8 (b) montre des spectres pour la même ouverture, pris pour la même puissance d'excitation  $10\mu W$  et une tension variable entre  $0,46$  et  $0,5\ V$ , qui agit sur le spectre de façon équivalente à l'augmentation de puissance sur la figure 6.3.8 (a).

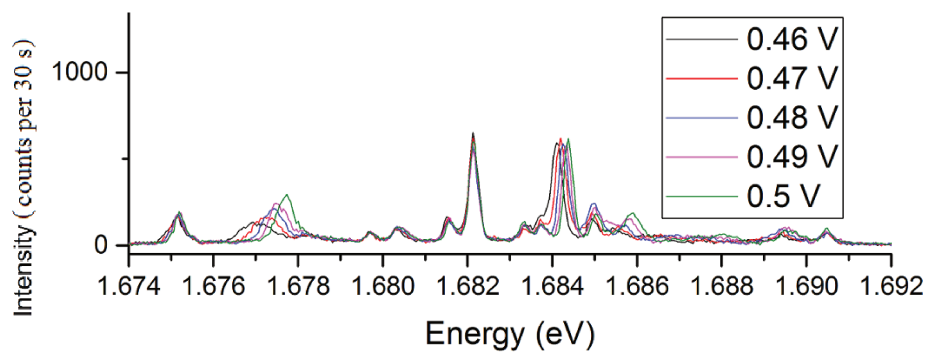
### 6.3.4 Etudes résolues en polarisation

Pour identifier des raies observées sur les spectres de photoluminescence en fonction de la tension, nous avons fait des études de photoluminescence résolue en polarisation linéaire. Comme dans les chapitres 3 et 5, nous utilisons un polariseur linéaire et une lame  $\lambda/2$  que nous tournons pour enregistrer les spectres pour 19 angles qui couvrent la région  $180^\circ$  (de  $\lambda/2$ ). La figure 6.3.9 montre les spectres pris pour deux positions orthogonales qui correspondent à l'orientation selon les axes cristallins de l'échantillon. Ces spectres présentent la polarisation des raies pour les spectres présentés sur la figure 6.3.7, pour une tension de  $0,6\ V$ .

Pour tous les pics, nous avons fait des ajustements des positions et des valeurs de FSS. Les résultats sont présentés dans le tableau 6.3:



(a)



(b)

Figure 6.3.8: (a) Spectres de photoluminescence pour 5 puissances différentes pour une tension de 0,5 V. (b) Spectres de photoluminescence pour la même ouverture avec une puissance fixe de 10  $\mu\text{W}$  et une tension variable entre 0,46 et 0,5 V.

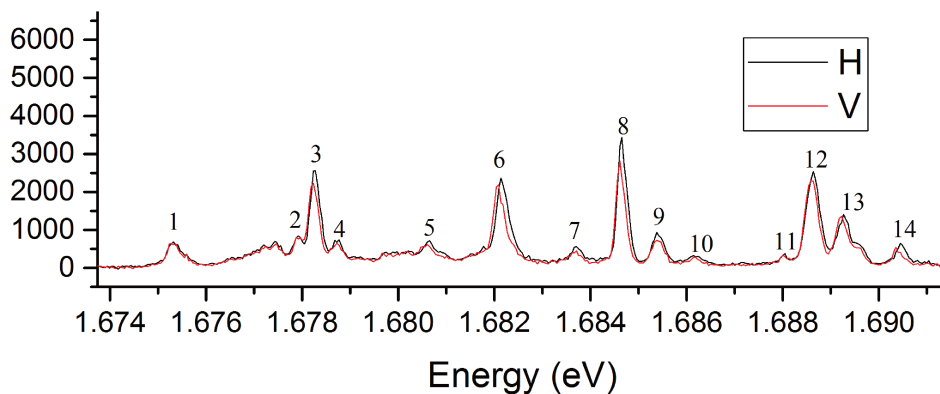


Figure 6.3.9: Spectre de photoluminescence pour deux angles d'analyse orthogonaux, pris pour une tension de 0,6 V et la puissance d'excitation de 10  $\mu\text{W}$ .



Numéro du pic (c.f. 6.3.9)	Energie moyenne (eV)	Valeur du splitting( $\mu\text{eV}$ )
3	1.67823	38
6	1.68213	74
8	1.68465	34
12	1.68863	37
13	1.68926	42
14	1.69044	75

Table 6.3: Valeurs des splittings de structure fine pour les raies sur la figure 6.3.9.

Notre résolution spectrale pendant ces mesures était de  $40 \mu\text{eV}$  ( $20 \mu\text{eV}$  après la déconvolution). Les autres raies sur la figure 6.3.9 ont un splitting de structure fine inférieur à  $20 \mu\text{eV}$ .

La figure 6.3.10 montre un schéma de raies avec une indication de présence de structure fine. En bleu, sont montrées des raies avec une structure fine (tableau 6.3).

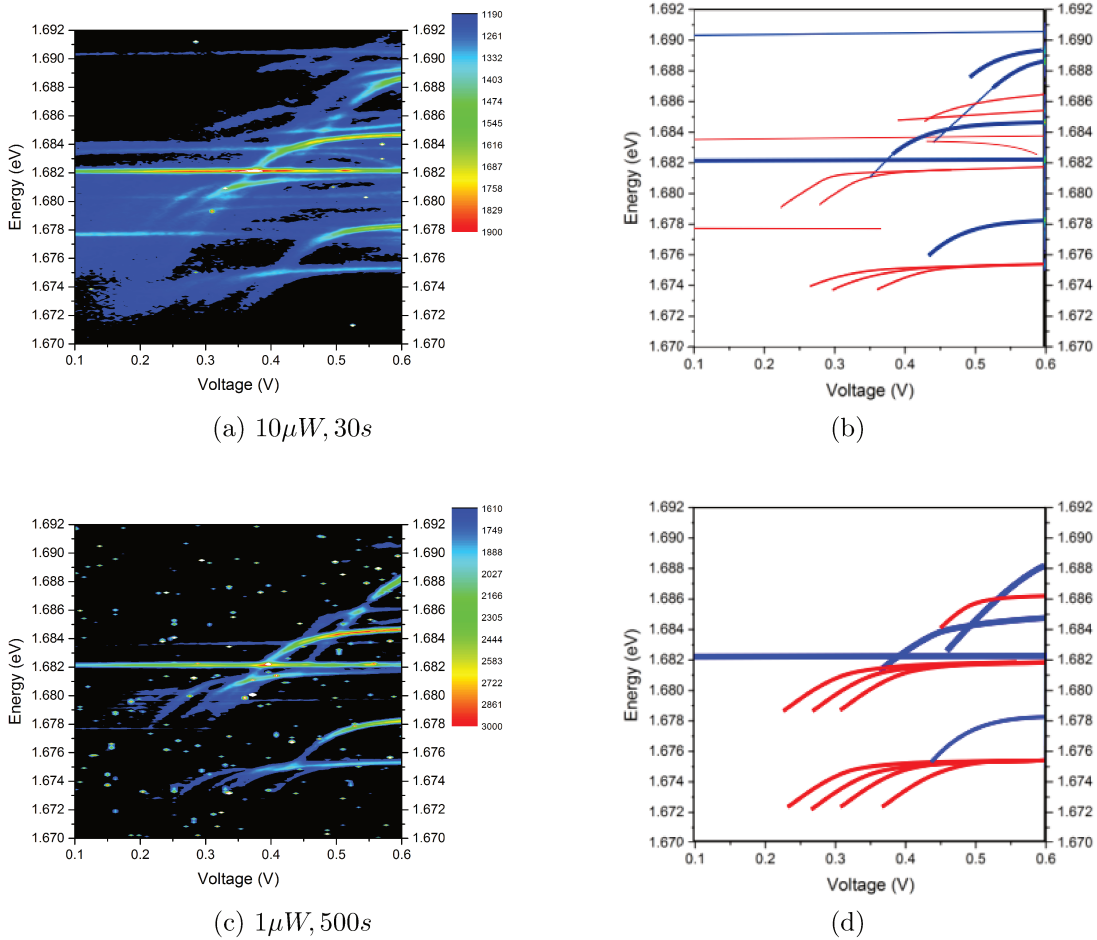


Figure 6.3.10: (a)(c) Spectres de photoluminescence à deux puissances d'excitation différentes, (b)(d) Schéma de raies en code couleur, montrant la présence de splitting de structure fine (en bleu - avec, en rouge - sans).

### 6.3.5 Identification des raies. Complexes excitoniques dans les boîtes

A ce stade, nous pouvons essayer d'identifier les raies observées. Pour le faire, intéressons-nous à la reproductibilité des résultats pour trouver des complexes de raies observés systématiquement. La figure 6.3.11 présente un spectre de photoluminescence obtenu pour une ouverture de  $2 \mu\text{m}$  en diamètre et un schéma de raies avec leur polarisation. Nous allons discuter les raies numérotées de la figure 6.3.11 à gauche dans les paragraphes suivants.

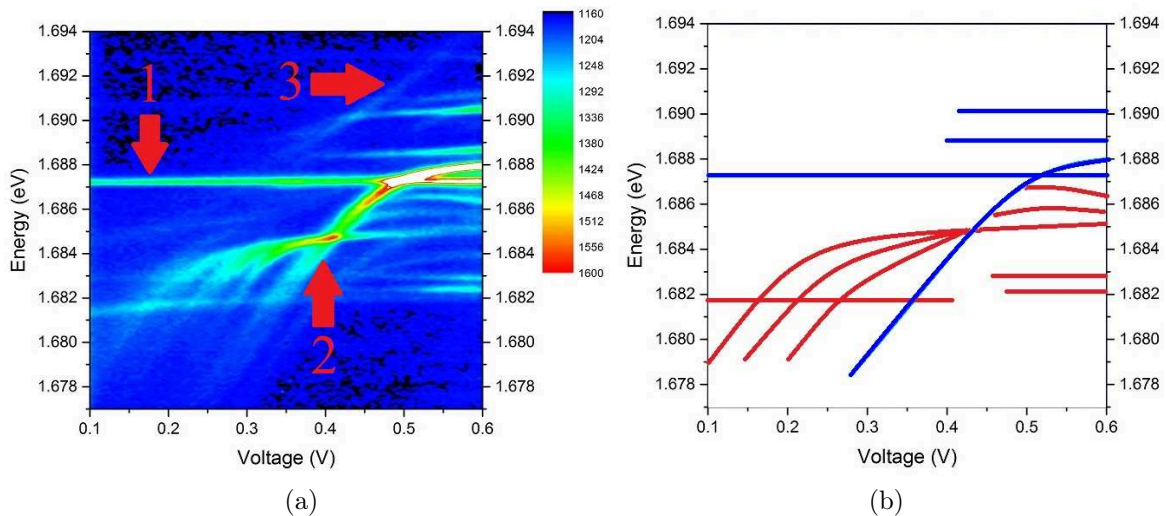


Figure 6.3.11: (a) Spectre de photoluminescence pour une ouverture de  $2 \mu\text{m}$  en diamètre obtenu avec une excitation à  $532 \text{ nm}$  ( $10 \mu\text{W}$ ), (b) schéma des raies en code couleur, montrant la présence de *splitting* de structure fine (en bleu - avec, en rouge - sans).

Rappelons-nous la classification de raies selon leur Stark-shift. Nous avons divisé toutes les raies observées en deux groupes. Le premier groupe est composé des raies avec un faible Stark shift; sur tous les spectres, nous avons au moins une raie forte de cette catégorie; ces raies présentent un *splitting* de structure fine. Sur la figure 6.3.11 une telle raie se trouve vers  $1.6872 \text{ eV}$  (raie numéro 1). Typiquement (sur la plupart de nos spectres), ces raies sont accompagnées par une raie qui présente un Stark shift fort; sur la figure 6.3.11 une telle raie se trouve vers  $1.6879 \text{ eV}$  (raie numéro 2). Nous avons mis de telles raies dans le deuxième groupe et nous les associons aux transitions indirectes. Pour expliquer l'origine de ces raies, intéressons-nous au travail de M.Scheibner et al. [155] qui ont étudié des QDM InAs/GaAs. Sur la figure 6.3.12 (figure 1(d) de [155]) on peut voir une structure de raies similaire à la nôtre<sup>1</sup>. La figure 6.3.12 est obtenue pour une QDM avec une barrière d'épaisseur  $6 \text{ nm}$  et la distance entre les centres des boîtes est de  $8,5 \text{ nm}$ .

<sup>1</sup>La figure dans l'article de Scheibner est inversée par rapport à nos figures car l'axe horizontal donne le champ effectif dans la structure. Sur nos figures, 0 correspond à l'absence de tension externe appliquée (champ effectif non-nul).

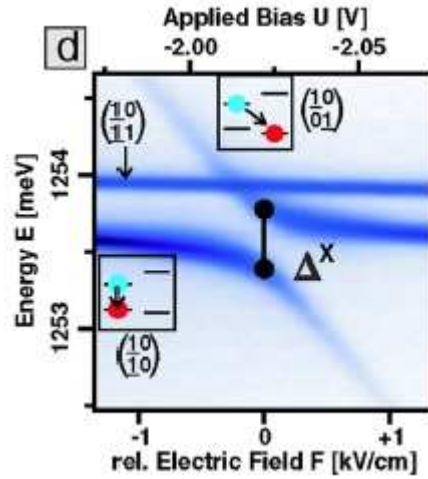


Figure 6.3.12: Spectre de photoluminescence obtenu par Scheibner et al. [155] pour une QDM InAs/GaAs avec une distance entre les centres des boîtes de 8,5 nm.

Scheibner et al. [155] associent la raie avec un faible Stark shift à une paire électron-trou dans la boîte à plus basse énergie, en présence d'un trou dans la deuxième boîte, donc l'état  $(\frac{1}{1}^0_1)$ . Dans nos résultats, cette raie (1) présente un splitting de structure fine (74  $\mu\text{eV}$  pour la figure 6.3.7, tableau 6.3). Contrairement à l'état  $X^+$ , dont les transitions optiques sont polarisées circulairement, ce complexe peut être considéré plutôt comme un exciton neutre, couplé avec une charge externe, qui modifie l'énergie de transition pour cette paire.

Maintenant, intéressons-nous à la raie avec un fort Stark-shift sur la figure (la raie numéro 2 de la figure 6.3.11) et comparons avec les raies sur la figure 6.3.12. Sur la figure 6.3.12, nous voyons qu'une raie similaire est l'une des deux branches qui forment l'anticroisement; elle est associée par Scheibner et al. aux excitons neutres et l'anticroisement observé est formé ainsi par l'état direct  $(\frac{1}{1}^0_0)$  et l'état indirect  $(\frac{1}{0}^0_1)$ .

Sur le spectre 6.3.12, la raie associée à  $(\frac{1}{1}^0_0)$  est plus haute en énergie que la raie associée à l'exciton neutre  $(\frac{1}{1}^0_0)$ . Nous pouvons conclure que dans ce cas, le sens de l'énergie de liaison pour un tel complexe positif est de même signe que pour les trions positifs dans une boîte unique, donc typiquement négative (figure 6.2.1), mais le décalage est relativement faible (environ 0,4 meV) à cause d'une distance plus grande entre les charges dans les deux boîtes qui forment la QDM (par rapport à une localisation dans une même boîte).

Pour les boîtes GaAs/AlGaAs, l'énergie de liaison pour les deux trions  $X^+$  et  $X^-$  est typiquement positive, et la raie associée à  $X^+$  est plus basse en énergie par rapport à la raie de  $X^0$  (figure 6.2.2). Ceci est en accord avec nos résultats, comme on peut le voir sur la figure 6.3.11 (à 0.6 V, la raie 2 est plus haut que la raie 1). L'écart de 0,7 meV est aussi plus petit que les valeurs typiques associées à un trion dans des boîtes GaAs/AlGaAs.

Dans notre échantillon, la barrière est plus fine, 4 nm par rapport à 6 nm dans l'échantillon de M.Scheibner et al. [155], ce qui devrait augmenter la force d'interaction coulombienne, mais il faudrait aussi considérer la forme de nos boîtes et estimer la distance entre les centres des boîtes.

Avant de faire ces estimations, il est nécessaire de noter que, contrairement aux résultats de Scheibner et al. [155], nous n'observons pas avec la même intensité la branche haute énergie de l'anticroisement entre un exciton direct  $\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$  et un exciton indirect  $\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ . La raie à haute énergie n'a été observée que très rarement et très faiblement au cours de nos mesures; sur la figure 6.3.11(a), c'est la raie numéro 3. Ce comportement, déjà constaté par A. Boyer de la Giroday et al. [156], peut être associé à une thermalisation efficace des porteurs vers l'état de plus basse énergie. Sur cette base, nous avons entrepris de modéliser cette branche de l'anticroisement à l'aide d'un modèle à deux niveaux, prenant en compte l'effet Stark relatif entre la transition directe  $E_0$  et la transition indirecte  $E_0 + p(V - V_0)$ :

$$\begin{pmatrix} E_0 & W \\ W & E_0 + p(V - V_0) \end{pmatrix} \quad (6.3.1)$$

$V_0$  correspond à la tension appliquée au croisement entre les deux transitions. La branche de basse énergie se modélise par:

$$E = E_0 + \frac{1}{2}p(V - V_0) - \frac{1}{2}\sqrt{p^2(V - V_0)^2 + 4W^2} \quad (6.3.2)$$

où  $p$  est la vitesse de changement d'énergie en fonction de tension appliquée ( $dE/dV$ ) et  $W$  est le terme de couplage entre les deux états ( $2W$  est la distance en énergie entre les branches au point d'alignement des niveaux dans les deux boîtes). Le résultat pour la branche à basse énergie de la figure 6.3.11 est présenté sur la figure 6.3.13.

Dans le tableau suivant, on trouve pour 6 QDM considérées:

Numéro de QDM	$E_0$ (meV)	$p$ (meV/Volt)	$V_0$ (Volt)	$W$ (meV)
1	1681.8	56.3	0.40	2.1
2	1685	66.7	0.39	2.3
3	1686.2	47.9	0.46	1.6
4	1691.5	48.8	0.43	1.1
5	1688.3	47.7	0.47	1.6
6	1678.6	56.3	0.46	1.6
Moyenne		54	0.43	1.7

Table 6.4: Valeurs des paramètres obtenus par modélisation de 6 raies associées aux anticroisements, utilisant l'expression 6.3.2.

A tension appliquée nulle (le champ appliqué  $\sim 44$  kV/cm), cet état se trouve à

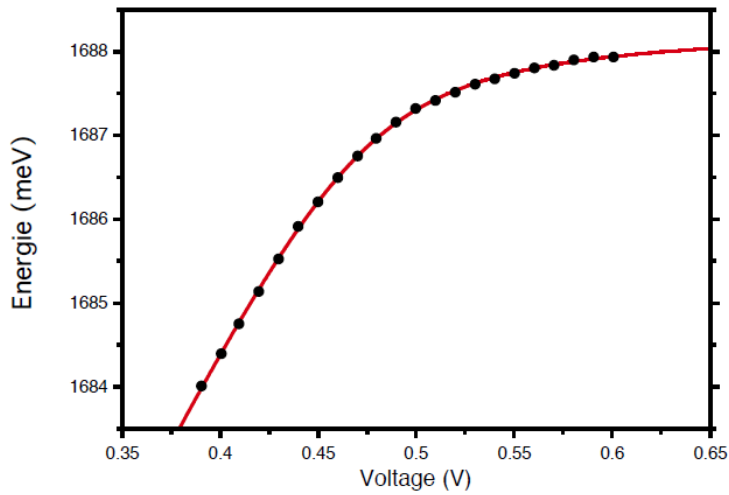


Figure 6.3.13: Ajustement de la raie 2 de la figure 6.3.11. Points - points expérimentaux, ligne - fonction d'ajustement.

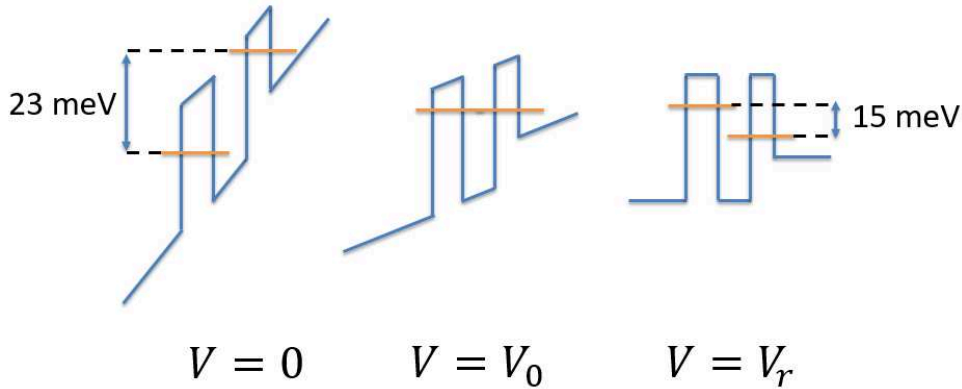


Figure 6.3.14: Schéma de niveaux de trous  $S$  dans une QDM pour trois valeurs de tension appliquée. Pour une meilleure représentation, les dimensions ne sont pas à l'échelle.

plus haute énergie, d'une quantité  $pV_0 \simeq 23\text{meV}$  (figure 6.3.14, gauche). Si l'on estime la tension résiduelle  $V_r$  à la surface de l'échantillon égale à 0,7 V, on obtient dans le régime "flat band", un écart moyen entre les états  $S$  de trous égale à  $p(V - V_0) \approx 15\text{meV}$ , l'état  $S_h$  de la boîte supérieure étant à plus basse énergie (figure 6.3.14, droite). Ici  $V_0$  donne la valeur de la tension externe appliquée pour laquelle on aligne les deux états (figure 6.3.14, centre). En l'absence de champ électrique local (tension appliquée  $V = V_r$ ), l'écart entre les états  $S$  de trou ( $\approx 15\text{meV}$ ) est inférieur à la valeur précédemment estimée, dans un modèle utilisant des puits quantiques, mais cette diminution peut sans doute s'expliquer par une correction des effets du confinement latéral (comme discuté précédemment).

La valeur moyenne de l'effet Stark des états indirects est comparable à ce qui est attendu. Pour une structure de longueur totale de 170 nm,  $p=54\text{ meV/Volt}$  correspond à une distance  $d=9\text{ nm}$  entre les centres de boîtes. Le modèle simplifié avec des puits quantiques estime  $d$  à 7 nm, mais cet écart peut s'expliquer par la non prise en compte

du confinement latéral, ce qui conduit à sous-estimer l'épaisseur de la boîte (à énergie d'émission constante, sans prise en compte du confinement latéral il faut augmenter le confinement selon  $z$  et réduire l'épaisseur effective des deux puits).

Nous voyons que la valeur de l'écart pour l'anticroisement observé est plus grande que celle obtenue par Scheibner et al. ( $420 \mu\text{eV}$ ). Le dernier paramètre  $W$ , concerne le couplage entre les transitions directe et indirecte. Dans les QDM à base de boîtes InAs/GaAs, les plus étudiées, en présence d'un croisement des états de valence, Scheibner et al. [155] ont mesuré une valeur de  $0,21 \text{ meV}$ , pour une barrière d'épaisseur  $b = 6 \text{ nm}$  et Doty et al. [157] ont observé un couplage  $W = 0,5 \text{ meV}$  pour  $b = 4 \text{ nm}$ . Pour des structures similaires, Bracker et al. [158] ont montré que  $W$  variait de  $0,2$  à  $1 \text{ meV}$  pour une épaisseur de barrière comprise entre  $2$  et  $6 \text{ nm}$ . A noter que les mêmes auteurs ont observé que ce terme de couplage était au moins un ordre de grandeur plus grand en cas de croisement des états de conduction.

Afin d'estimer la valeur de ce couplage pour nos structures, nous allons reprendre la modèle 1D, basé sur des puits quantiques GaAs/AlGaAs. Nous reprenons les mêmes paramètres de bandes, de masses et de concentrations d'aluminium, que précédemment, avec une largeur du puits supérieur égale à  $L_T = 1,8 \text{ nm}$ . La seule modification porte sur le puits inférieur dont la largeur est réduite à  $L_B = 2,4 \text{ nm}$  afin de reproduire un écart entre les états S de valence comparable à celui estimé par nos mesures ( $\approx 15 \text{ meV}$ ), et ainsi compenser la non-prise en compte du confinement latéral.

La figure 6.3.15 présente la dépendance des transitions directe et indirecte, entre états S de conduction et de valence, pour 3 épaisseurs de la barrière  $\text{Al}_{0,45}\text{Ga}_{0,55}\text{As}$  entre les puits ( $b = 3 ; 3,5$  et  $4 \text{ nm}$ ).  $E_0$  est l'énergie des transitions au croisement des branches, en l'absence de couplage ;  $F_0$  est le champ électrique effectif à ce croisement (compris entre  $20$  et  $24 \text{ kV/cm}$  selon l'épaisseur de la barrière). Cette figure met clairement en évidence l'anticroisement entre les branches et l'augmentation du splitting  $2W$  avec la diminution de l'épaisseur  $b$  de la barrière.

Le comportement du paramètre de couplage  $W$  est présenté sur la figure 6.3.16 en fonction de l'épaisseur de la barrière. La valeur moyenne que nous avons mesurée correspond à une épaisseur effective  $b = 3,5 \text{ nm}$ , proche de la valeur nominale. On constate également une forte dépendance de  $W$  avec  $b$ , dans cette gamme d'épaisseur. Une faible variation de l'épaisseur  $b$  entre les QDM analysées peut donc expliquer la dispersion des valeurs de  $W$  que nous avons mesurées. A noter qu'un calcul similaire, avec un très fort champ électrique permettant de coupler les états S de conduction, a montré que le terme de couplage était environ  $10$  fois supérieur, et bien supérieur à la valeur mesurée.

En conclusion, l'approche semi-quantitative, basée sur le couplage de deux puits quantiques, permet de bien comprendre et d'analyser nos observations : (i) prédiction

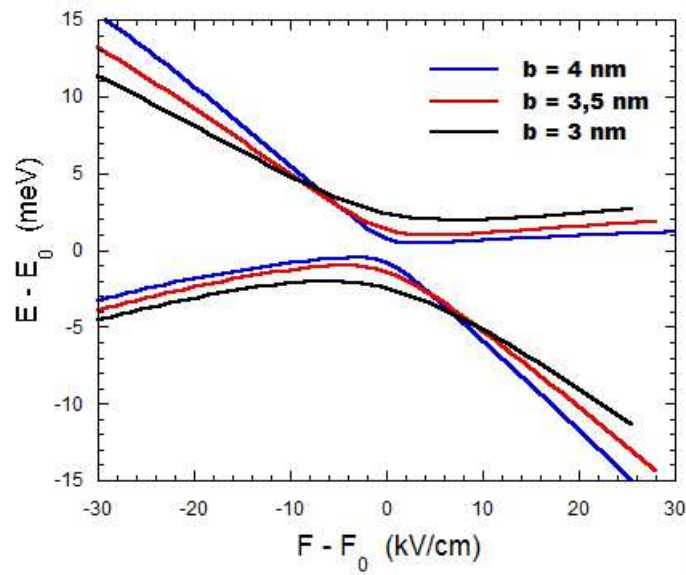


Figure 6.3.15: Modélisation de l'anticroisement entre états  $S$  pour 3 épaisseurs de la barrière, pour une QDM présentée sur la figure 6.3.12.

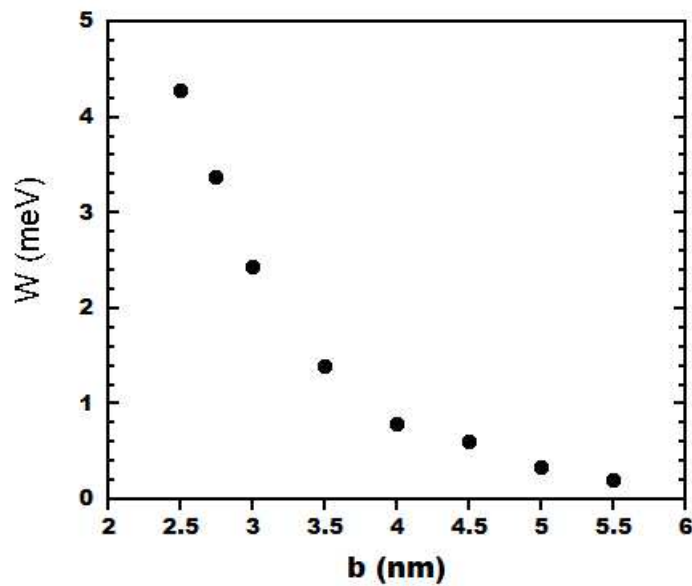


Figure 6.3.16: Valeur du paramètre de couplage  $W$  en fonction de l'épaisseur de la barrière (modélisation).

d'un anticroisement entre états S de valence, (ii) effet Stark de la transition indirecte cohérent avec les paramètres de la structure, (iii) bon ordre de grandeur du couplage  $W$  et du champ électrique. Une optimisation de la structure reste à faire, en particulier pour observer le croisement entre états de conduction, ainsi qu'une analyse plus complète des nombreuses raies observées (associés aux états multichargés). Il serait également utile de développer une modélisation 3D capable de prendre en compte l'effet du confinement latéral qui semble jouer un rôle significatif. Cependant, nos premiers résultats et nos premières mises en évidence sont très prometteurs et des travaux futurs pourront s'appuyer sur les développements technologiques mis en place au cours de ce travail.

## 6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté des résultats sur le contrôle de charge, dans des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous, dans une structure n-i Schottky.

Nous avons d'abord étudié un échantillon avec des boîtes uniques - un système relativement simple. Le but de ces études était de déterminer quels états étaient accessibles et à quelles tensions, d'estimer la possibilité de contrôler le chargement des boîtes, et comparer ces résultats avec des études précédentes, qu'on trouve dans la littérature.

Nous avons trouvé une bonne correspondance entre nos systèmes et ceux discutés par d'autres équipes. Bien que n'ayant pas disposé d'une résolution en polarisation suffisante pour séparer états chargés et neutres, nous avons pu observer une dépendance au champ électrique appliqué similaire à celle rencontrée pour d'autres boîtes insérées dans une n-i Schottky. En particulier, l'observation d'un exciton neutre  $X$ , suivi de l'apparition d'états chargés  $X^-$ ,  $X^{2-}$ ,  $X^{3-}$  (dont l'énergie de liaison varie entre 3 et 4,5 meV), est tout à fait en accord avec les résultats obtenus sur les boîtes InAs/GaAs, les plus étudiées, ainsi que pour les boîtes GaAs droplet. La présence d'une forte barrière sur le contact n semble avoir interdit la mise en évidence du trion positif. A noter que dans notre système, son énergie de liaison est attendue positive, comme pour les droplets GaAs, contrairement aux boîtes InAs dans lesquels le trion positif est à plus haute énergie sur l'exciton neutre. D'autres structures et barrières seraient à réaliser pour atteindre cet état positif.

Ensuite, nous nous sommes intéressés aux QDM - deux boîtes quantiques dans un nanotrou. Les paramètres de notre échantillon ont été choisis pour aligner des états de trous, obtenir la signature de l'anticroisement sur des spectres de photoluminescence et déterminer leurs propriétés. Utilisant une approche unidimensionnelle, avec des puits quantiques, nous avons pu déduire des spectres de photoluminescence, les positions rel-



atives des états confinés et estimé l'effet du champ électrique. Des mesures de photoluminescence en fonction du champ électrique appliqué, nous ont permis d'observer la signature de transitions indirectes et d'un couplage entre états de valence. Cependant, l'observation des deux branches de cet anticroisement s'est montrée difficile, la raie haute énergie étant très peu visible et souvent absente. Une raison possible de ce comportement est une thermalisation rapide des états de la branche à plus haute énergie vers la branche à plus basse énergie, ce qui a été rapporté par d'autres équipes.

La modélisation de l'énergie de ces états nous a permis d'estimer la valeur du paramètre du couplage qui contrôle l'écart entre les deux branches. Les valeurs obtenues sont plus grandes que celles trouvées dans la littérature pour InAs/GaAs. A nouveau, une analyse unidimensionnelle des états électroniques a montré que ce paramètre était fortement influencé par l'épaisseur de la barrière et a permis de reproduire la valeur observée pour une gamme d'épaisseur cohérente avec la structure (dans la limite des approximations utilisées).

La présence d'états chargés ou multichargés (même pour des puissance d'excitation faibles) et de possibles croisements entre états fondamentaux et excités, rendent le spectre de photoluminescence complexe. Nous nous sommes limités aux structures principales. L'analyse de la photoluminescence résolue en polarisation a permis de mettre en évidence des transitions circulaires, liées à des états chargés, mais un effort important reste à faire pour comprendre davantage nos observations. Cependant, nos premiers résultats et nos premières mises en évidence sont très prometteurs, avec un couplage significatif entre boîtes, et des travaux futurs pourront s'appuyer sur les développements technologiques mis en place au cours de ce travail pour améliorer les structures et la maîtrise de ces molécules.

Chapitre 7

Conclusion

---

L'objectif général de ce travail de thèse était d'améliorer les connaissances sur les propriétés d'une nouvelle famille de boîtes quantiques, des boîtes GaAs/AlGaAs obtenues par remplissage de nanotrous. Moins étudiées que les boîtes quantiques InAs/GaAs, ce nouveau système présente l'avantage d'être non contraint et la technologie développée permet d'envisager un contrôle spatial des boîtes ou molécules synthétisées, ce qui constitue un avantage important en vue de la réalisation de dispositifs. Ce travail a été effectué en collaboration avec l'équipe de croissance et en particulier avec Paola Atkinson, au sein de l'INSP. Il est important de maîtriser la procédure de croissance pour pouvoir obtenir des boîtes quantiques avec des paramètres souhaités. Un des objectifs était ainsi de caractériser plusieurs échantillons et analyser leurs propriétés en fonction de paramètres de croissance. Nous avons pu, à partir de mesures de photoluminescence, effectuer cette analyse et choisir des échantillons pour des études fines de leurs propriétés optiques et électroniques.

Nous avons commencé la présentation des résultats expérimentaux par nos études du mélange de trous lourds et de trous légers. Un travail approfondi sur les boîtes InAs/GaAs, fortement contraintes, a été fait à l'INSP par Catherine Tonin pendant sa thèse, soutenue en 2012. L'importance du mélange lourd-léger, principalement induit par les contraintes avait été clairement mise en évidence, et en particulier son influence sur les propriétés optiques et de polarisation. Nous avons repris ces études sur les paramètres de mélange et appliqué les mêmes approches pour étudier des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Nos résultats sur un échantillon de référence avec des boîtes auto-assemblées InAs/GaAs sont en accord avec les résultats précédents. La différence principale entre ces deux familles de boîtes est la présence ou non de contraintes. Pour les boîtes InAs/GaAs, ces effets sont prédominants et ont une contribution forte au paramètre de mélange, ce qui induit, dans le même temps, une dispersion forte. Le but de notre étude était donc de voir quelles conséquences l'absence de contrainte dans les boîtes GaAs/AlGaAs aurait sur les effets du mélange. Nous avons trouvé que le paramètre quantifiant la force du mélange a une distribution plus homogène pour les boîtes GaAs/AlGaAs, et que les valeurs de ce paramètre sont plus faibles que pour les boîtes InAs, tout en étant du même ordre de grandeur. S'appuyant sur des études récentes, les effets dominants, pour la taille considérée, les contributions principales semblent être les effets d'asymétrie, extrinsèque (car liés aux irrégularités à l'échelle atomique aux interfaces des boîtes) ou intrinsèques (car induits par l'inéquivalence des axes cristallins). Ces travaux ouvrent la porte à des études théoriques qui pourront s'appuyer non seulement sur les études optiques mais également sur la possibilité de mesurer la taille et la forme des boîtes, in situ, par mesure AFM, ce qui constitue un atout pour la modélisation.

Ensuite, nous avons présenté nos résultats sur les mesures de paramètres magnétooptiques de boîtes quantiques. Cette partie du projet a conduit au développement

d'une expérience de micromagnétoluminescence, résolue en polarisation. Cette expérience n'existait pas au début de cette thèse, et son développement a nécessité un fort investissement, afin de travailler à basse température et fort champ magnétique, transverse ou longitudinal.

La première étape de cette étude a été réalisée sur les boîtes InAs/GaAs auto-assemblées, relativement bien étudiées, et nos résultats se sont révélés en accord avec la littérature. Nous avons ensuite mené une étude précise des propriétés magnétooptiques des boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Nous avons pu extraire de façon exhaustive, sur boîtes quantiques uniques, l'ensemble des paramètres caractérisant une boîte (facteur de Landé, décalage diamagnétique, splittings d'échange entre états excitoniques noirs et/ou brillants). Un point remarquable est la bonne homogénéité de ces paramètres, ce qui indique la possibilité de réaliser des ensembles de boîtes très similaires. Une attention particulière a été portée aux excitons noirs, visibles en présence d'un champ transverse. Peu d'expériences sur boîtes GaAs/AlGaAs sont disponibles et ce travail permet de combler en partie ce manque. Ce point est d'autant plus important que les excitons noirs devraient présenter des temps de vie et de cohérence longs, ce qui en fait de bons candidats comme qubits.

Nos travaux en champ magnétique nous ont également conduit à étudier la polarisation des états excitoniques dans les boîtes GaAs/AlGaAs. Un comportement original est apparu dans l'analyse de la polarisation des états noirs, à fort champ (8 T). En dépit d'une configuration privilégiant les états excitoniques polarisés linéairement, nous avons observé la présence d'un état noir dont la polarisation pouvait être linéaire, circulaire ou elliptique, à 8 T. Pour comprendre et quantifier ce résultat, nous avons appliqué un modèle théorique récemment décrit par Zielinski et al. [134] et prenant en compte un couplage entre excitons noirs et brillants à champ nul. Cette modélisation reproduit le comportement observé par la polarisation excitonique de nos boîtes et semble bien prédire le comportement en champ des excitons noirs. Ceci confirme la possibilité de faire évoluer le diagramme de polarisation d'une façon qui correspond à nos résultats expérimentaux. L'étape suivante serait de continuer les études, de façon plus détaillée et systématique pour affiner l'analyse des paramètres de couplage (par exemple des séries de mesures en champ magnétique pour toute la gamme de valeurs de champ, de 0 à 8 T, avec l'analyse de polarisation). Malheureusement, à cause de pannes du cryostat, nous n'avons pas pu faire ces études pour conclure de façon définitive quant à l'importance de ce mécanisme de couplage. Il semble indispensable de poursuivre ces travaux, d'autant que les travaux théoriques prédisent que ce couplage est d'autant plus fort que la symétrie  $C_{2v}$  sera brisée, processus à l'origine du mélange lourd-léger (une prise en compte de ce mélange sera également à considérer, bien que compliquant la modélisation).

---

Dans le dernier chapitre, des premiers travaux sur structures à contrôle de charge ou d'énergie ont été réalisés. Cette partie a nécessité des développements technologiques (lithographie et gravure, dépôt de contact). Après une première structure et la mise en évidence du contrôle de charge dans des boîtes uniques, insérées dans une structure n-i-Schottky, nous nous sommes tournés vers la réalisation et l'étude de doubles boîtes quantiques, ou molécules. Ces structures constituent un système modèle, qui peut être considéré comme une brique élémentaire permettant de coupler deux qubits. De plus, la possibilité de contrôler la charge et de créer des états multichargés, délocalisés dans les deux boîtes, permet de générer un grand nombre d'états quantiques dont le couplage peut être piloté par une tension. S'appuyant sur la possibilité de déposer deux boîtes dans un même nanotrou, nous avons pu mettre en évidence des premiers résultats sur doubles boîtes quantiques GaAs/AlGaAs. Nous avons mis en évidence des états excitoniques directs et indirects, ainsi que des états neutres ou chargés. Un travail important de contrôle de la taille des boîtes reste à faire, pour maîtriser la nature du couplage entre boîtes (via les états de valence ou de conduction), mais nos travaux sont très encourageants car ils ont permis de mettre en évidence un couplage entre boîtes, via les états de valence, avec une bonne analyse quantitative. Très peu de résultats sont disponibles sur ce type de molécules, contrairement au QDM à base de InAs. Or la technologie développée à l'INSP et dans peu de groupes dans le monde, doit permettre à terme de contrôler la position des QDM, l'homogénéité de la taille, les niveaux énergétiques et la charge.

Enfin, ces travaux ont apporté un grand nombre d'informations quant aux propriétés et paramètres régissant les boîtes GaAs/AlGaAs synthétisées dans des nanotrous. Ils ouvrent également la porte à de nouveaux projets, tant sur la nature des excitons noirs et de leur couplage avec les états brillants, que dans la perspective du contrôle de briques élémentaires pour le traitement quantique de l'information via des molécules contrôlées électriquement et/ou optiquement.

# Bibliography

- [1] A. I. Ekimov and A. A. Onushchenko, “Size quantization of the electron energy spectrum in a microscopic semiconductor crystal,” 1984.
- [2] A. Ekimov, A. Efros, and A. Onushchenko, “Quantum Size Effect in Semiconductor Microcrystals,” *Solid State Communications*, vol. 56, no. 11, pp. 921–924, 1985.
- [3] X. Michalet, F. Pinaud, L. Bentolila, J. Tsay, S. Doose, J. Li, G. Sundaresan, A. Wu, S. Gambhir, and S. Weiss, “Quantum Dots for Live Cells, in Vivo Imaging, and Diagnostics X.,” *Science*, vol. 307, no. 5709, pp. 538–544, 2005.
- [4] V. L. Colvin, M. C. Schlamp, and A. P. Alivisatos, “Light-emitting diodes made from cadmium selenide nanocrystals and a semiconducting polymer,” *Nature*, vol. 370, pp. 354–357, 1994.
- [5] R. P. Feynman, “Simulating physics with computers,” *International Journal of Theoretical Physics*, vol. 21, no. 6-7, pp. 467–488, 1982.
- [6] P. W. Shor, “Scheme for reducing decoherence in quantum computer memory,” *Physical Review A*, vol. 52, no. 4, pp. 2493–2496, 1995.
- [7] J. I. Cirac and P. Zoller, “Quantum computations with cold trapped ions,” *Physical Review Letters*, vol. 74, no. 20, pp. 4091–4094, 1995.
- [8] J. M. Martinis, S. Nam, J. Aumentado, and C. Urbina, “Rabi oscillations in a large Josephson-junction qubit.,” *Physical review letters*, vol. 89, no. 11, p. 117901, 2002.
- [9] Q. Turchette, C. Hood, W. Lange, H. Mabuchi, and H. Kimble, “Measurement of Conditional Phase Shifts for Quantum Logic,” *Physical Review Letters*, vol. 75, no. 25, pp. 4710–4713, 1995.
- [10] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux, “Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices,” *Applied Physics Letters*, vol. 47, no. 10, pp. 1099–1101, 1985.

- [11] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu, “A quantum dot single-photon turnstile device.,” *Science (New York, N.Y.)*, vol. 290, no. 5500, pp. 2282–2285, 2000.
- [12] C. Santori, D. Fattal, J. Vucković, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, “Indistinguishable photons from a single-photon device.,” *Nature*, vol. 419, no. 6907, pp. 594–597, 2002.
- [13] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, and M. Bichler, “Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode,” vol. 418, no. August, pp. 612–614, 2002.
- [14] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, “Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity,” *Nature*, vol. 432, no. November, pp. 200–203, 2004.
- [15] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel, “Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system.,” *Nature*, vol. 432, no. 7014, pp. 197–200, 2004.
- [16] W. B. Gao, P. Fallahi, E. Togan, J. Miguel-Sanchez, and A. Imamoglu, “Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon,” *Nature*, vol. 491, no. 7424, pp. 426–430, 2012.
- [17] D. Gammon, E. Snow, B. Shanabrook, D. Katzer, and D. Park, “Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 76, pp. 3005–3008, apr 1996.
- [18] D. Gammon, A. L. Efros, T. a. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, and I. a. Merkulov, “Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 86, no. 22, pp. 5176–5179, 2001.
- [19] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham, “An All-Optical Quantum Gate in a Semiconductor Quantum Dot,” *Science*, vol. 301, no. 5634, pp. 809–811, 2003.
- [20] Z. M. Wang, B. L. Liang, K. A. Sablon, and G. J. Salamo, “Nanoholes fabricated by self-assembled gallium nanodrill on GaAs(100),” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 113120, pp. 1–3, 2007.
- [21] P. Atkinson, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in situ Ga-assisted

- deoxidation of patterned substrates,” *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 101908, pp. 1–4, 2008.
- [22] K. D. Jons, P. Atkinson, M. Muller, M. Heldmaier, S. M. Ulrich, O. G. Schmidt, and P. Michler, “Triggered indistinguishable single photons with narrow line widths from site-controlled quantum dots,” *Nano Letters*, vol. 13, no. 1, pp. 126–130, 2013.
- [23] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, “Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys,” *Journal of Applied Physics*, vol. 89, no. 11 I, pp. 5815–5875, 2001.
- [24] “<http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaAs/basic.html>.”
- [25] “<http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/InAs/>.”
- [26] “<http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/AlGaAs/>.”
- [27] J.-W. Wu, “Binding energies of excitons in semiconductor quantum wells: Quantum subband interference effect,” vol. 39, no. 17, pp. 944–947, 1989.
- [28] H. LEE, L. JURAVEL, J. WOOLLEY, and A. THORPE, “Electron transport and band structure of  $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$  alloys,” *Physical Review B*, vol. 21, no. 2, pp. 659–669, 1980.
- [29] S. Adachi, “GaAs, AlAs, and  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ,” *Journal of Applied Physics*, vol. 58, no. 3, 1985.
- [30] J. Gain, M. D. Sarkar, S. Kundu, and R. Road, “Energy and Effective Mass Dependence of Electron Tunnelling Through Multiple Quantum barriers in Different,” *arXiv:1002.1931v1*, pp. 1–8.
- [31] A. K. Saxena, “Conduction and valence band offsets in GaAlAs / GaAs / GaAlAs quantum wells from photo-luminescence and deep level transient spectroscopy under hydrostatic pressure,” vol. 113, pp. 201–206, 2000.
- [32] C. Pryor, “Eight-band calculations of strained InAs/GaAs quantum dots compared with one-, four-, and six-band approximations,” *Physical Review B*, vol. 57, no. 12, pp. 7190–7195, 1998.
- [33] P. Maletinsky, C. Lai, a. Badolato, and a. Imamoglu, “Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins,” *Physical Review B*, vol. 75, p. 035409, jan 2007.
- [34] J. Frenkel, “On the transformation of light into heat in solids. i,” *Physical Review*, vol. 37, no. 1, pp. 17–44, 1931.
- [35] G. H. Wannier, “The structure of electronic excitation levels in insulating crystals,” *Physical Review*, vol. 52, no. 3, pp. 191–197, 1937.



- 
- [36] P. Tighineanu, R. Daveau, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe, and P. Lodahl, “Decay dynamics and exciton localization in large GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy,” *arXiv:1306.6806v2 [cond-mat.mes-hall]*, pp. 1–13, 2014.
- [37] B. Baylac, X. Marie, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, and Y. Shekun, “Hole spin relaxation in intrinsic quantum wells,” *Surface Science*, vol. 326, no. 1-2, pp. 161–166, 1995.
- [38] H. van Kesteren, E. Cosman, and W. van der Poel, “Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 41, no. 8, 1989.
- [39] E. Blackwood, M. J. Snelling, R. T. Harley, S. R. Andrews, and C. T. B. Foxon, “Exchange interaction of excitons in GaAs heterostructures,” *Physical Review B*, vol. 50, no. 19, pp. 14246–14254, 1994.
- [40] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, a. Kuther, a. Gorbunov, a. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer, “Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 65, p. 195315, may 2002.
- [41] S. Sancho, M. Chaouache, M. A. Maaref, F. Bernardot, B. Eble, A. Lemaître, and C. Testelin, “Optical orientation of bright excitons in InAs/GaAs quantum dots: Influence of a Faraday magnetic field and the dark exciton states,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 84, no. 155458, pp. 1–6, 2011.
- [42] J. Tischler, a. Bracker, D. Gammon, and D. Park, “Fine structure of trions and excitons in single GaAs quantum dots,” *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 081310(R), pp. 1–4, 2002.
- [43] A. F. Tsatsul’nikov, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, Y. M. Shernyakov, Y. G. Musikhin, V. M. Ustinov, N. A. Bert, P. S. Kop’ev, Z. I. Alferov, A. M. Mintairov, J. L. Merz, N. N. Ledentsov, and D. Bimberg, “Volmer–Weber and Stranski–Krastanov InAs-(Al,Ga)As quantum dots emitting at 1.3  $\mu\text{m}$ ,” *Journal of Applied Physics*, vol. 88, no. 11, p. 6272, 2000.
- [44] I. N. Stranski and L. Krastanov, “Stranski, I. N., Krastanov, L.,” *Sitzungsberichte der Akademie der Wissenschaften Wien, Math.-Naturwiss. Klasse IIb*, vol. 146, p. 797, 1937.
- [45] E. Bauer, “Phanomenologische Theorie der KristallabScheidung an Oberflächen. I,” *Zeitschrift für Kristallographie*, vol. 110, pp. 372–394, 1958.
- [46] A. Baskaran and P. Smereka, “Mechanisms of Stranski-Krastanov growth,” *Journal of Applied Physics*, vol. 111, no. 044321, pp. 1–6, 2012.
-

- [47] D. M. Bruls, J. W. A. M. Vugs, P. M. Koenraad, H. W. M. Salemink, J. H. Wolter, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, F. Long, and S. P. A. Gill, "Determination of the shape and indium distribution of low-growth-rate InAs quantum dots by cross-sectional scanning tunneling microscopy," *Applied Physics Letters*, vol. 81, no. 9, pp. 1708–1710, 2002.
- [48] R. Ohtsubo and K. Yamaguchi, "High quality InAs quantum dots covered by In-GaAs/GaAs hetero-capping layer," *Physica Status Solidi C: Conferences*, vol. 943, no. 3, pp. 939–943, 2003.
- [49] N. Cherkashin, M. Maksimov, A. Makarov, V. Shchukin, V. Ustinov, N. Lukovskaya, Y. Musikhin, G. Cirlin, N. Bert, Z. Alferov, N. Ledentsov, and D. Bimberg, "Control over the parameters of InAs-GaAs quantum dot arrays in the Stranski-Krastanow growth mode," *Semiconductors*, vol. 37, no. 7, pp. 861–865, 2003.
- [50] T. Passow, S. Li, P. Feinaugle, T. Vallaitis, J. Leuthold, D. Litvinov, D. Gerthsen, and M. Hetterich, "Systematic investigation into the influence of growth conditions on InAs/GaAs quantum dot properties," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, no. 7, p. 073511, 2007.
- [51] A. O. Kosogov, P. Werner, U. Go, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. A. Bert, and Z. I. Alferov, "Structural and optical properties of InAs – GaAs quantum dots subjected to high temperature annealing," *Applied Physics Letters*, vol. 69, no. November, pp. 3072–3074, 1996.
- [52] D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, R. J. Young, A. J. Shields, P. Atkinson, and D. A. Ritchie, "Control of fine-structure splitting of individual InAs quantum dots by rapid thermal annealing," *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 011907, pp. 0–3, 2007.
- [53] A. Nemcsics, "Quantum Dots Prepared by Droplet Epitaxial Method," *Quantum Dots - Theory and Applications*, 2015.
- [54] N. Koguchi, S. TAKAHASHI, and T. CHIKYOW, "New Mbe Growth Method for Insb Quantum-Well Boxes," *Journal Of Crystal Growth*, vol. 111, no. 1-4, pp. 688–692, 1991.
- [55] L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Structural and optical properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots treated by partial capping and annealing," *Journal of Applied Physics*, vol. 100, no. 6, pp. 2006–2009, 2006.
- [56] Z. Gong, Z. C. Niu, S. S. Huang, Z. D. Fang, B. Q. Sun, and J. B. Xia, "Formation of GaAs/AlGaAs and InGaAs/GaAs nanorings by droplet molecular-beam epitaxy," *Applied Physics Letters*, vol. 87, no. 093116, pp. 2–5, 2005.

- [57] N. Koguchi, K. Ishige, and S. Takahashi, “New selective molecular-beam epitaxy growth method for direct formation of GaAs quantum dots,” *Journal of Vacuum Science & Technology B*, vol. 11, no. 3, p. 787, 1993.
- [58] T. Ohno and K. Shiraishi, “First-principles study of sulfur passivation of GaAs(001) surfaces,” *Physical Review B*, vol. 42, no. 17, pp. 11194–11197, 1990.
- [59] K. Watanabe and N. Koguchi, “High-Quality GaAs Quantum Dots Grown Using a Modified Droplet Epitaxy Technique,” vol. 38, no. 1, pp. 25–28, 2001.
- [60] S. Sanguinetti, K. Watanabe, T. Tateno, M. Gurioli, P. Werner, M. Wakaki, and N. Koguchi, “Modified droplet epitaxy GaAs/AlGaAs quantum dots grown on a variable thickness wetting layer,” *Journal of Crystal Growth*, vol. 253, no. 1-4, pp. 71–76, 2003.
- [61] J. Bocquel, A. D. Giddings, T. Mano, T. J. Prosa, D. J. Larson, and P. M. Koenraad, “Composition profiling of GaAs/AlGaAs quantum dots grown by droplet epitaxy,” *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 15, 2014.
- [62] C. Heyn, M. Klingbeil, C. Strelow, A. Stemmann, S. Mendach, W. Hansen, T. Köppen, C. Strelow, T. Kipp, M. Grave, S. Mendach, and W. Hansen, “Single-dot Spectroscopy of GaAs Quantum Dots Fabricated by Filling of Self-assembled Nanoholes,” *Nanoscale research letters*, vol. 5, pp. 1633–1636, jan 2009.
- [63] P. Atkinson, E. Zallo, and O. G. Schmidt, “Independent wavelength and density control of uniform GaAs/AlGaAs quantum dots grown by infilling self-assembled nanoholes,” *Journal of Applied Physics*, vol. 112, no. 054303, pp. 1–5, 2012.
- [64] C. Heyn, A. Stemmann, T. Köppen, C. Strelow, T. Kipp, M. Grave, S. Mendach, and W. Hansen, “Highly uniform and strain-free GaAs quantum dots fabricated by filling of self-assembled nanoholes,” *Applied Physics Letters*, vol. 94, no. 18, pp. 55–58, 2009.
- [65] D. Sonnenberg, A. Küster, A. Graf, C. Heyn, and W. Hansen, “Vertically stacked quantum dot pairs fabricated by nanohole filling,” *Nanotechnology*, vol. 25, p. 215602, may 2014.
- [66] G. W. Bryant, M. Zielinski, N. Malkova, J. Sims, W. Jaskolski, and J. Aizpurua, “Effect of mechanical strain on the optical properties of quantum dots: Controlling exciton shape, orientation, and phase with a mechanical strain,” *Physical Review Letters*, vol. 105, no. 067404, pp. 1–4, 2010.
- [67] J. D. Plumhof, R. Trotta, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Experimental methods of post-growth tuning of the excitonic fine structure splitting in semiconductor quantum dots,” *Nanoscale Research Letters*, vol. 7, pp. 1–11, 2012.

- [68] E. Margapoti, L. Worschech, A. Forchel, A. Tribu, T. Aichele, R. Andf, and K. Kheng, “Annealing induced inversion of quantum dot fine-structure splitting,” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 181927, pp. 1–4, 2007.
- [69] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, D. Granados, J. M. Garcia, K. Kowalik, O. Krebs, K. Karrai, A. Badolato, and P. M. Petroff, “Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field,” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 041101, pp. 1–4, 2007.
- [70] J. D. Mar, J. J. Baumberg, X. L. Xu, A. C. Irvine, and D. A. Williams, “Electrical control of quantum-dot fine-structure splitting for high-fidelity hole spin initialization,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 93, no. 045316, pp. 2–5, 2016.
- [71] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. See, D. G. Gevaux, K. Cooper, P. Atkinson, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 73, no. 033306, pp. 1–4, 2006.
- [72] M. A. Pooley, A. J. Bennett, A. J. Shields, I. Farrer, and D. A. Ritchie, “Energy-tunable quantum dot with minimal fine structure created by using simultaneous electric and magnetic fields,” *Physical Review Applied*, vol. 1, no. 024002, pp. 1–5, 2014.
- [73] S. Ahmed, M. Usman, C. Heitzinger, R. Rahman, A. Schliwa, and G. Klimeck, “Symmetry breaking and fine structure splitting in zincblende quantum dots: Atomistic simulations of long-range strain and piezoelectric field,” *AIP Conference Proceedings*, vol. 893, pp. 849–850, 2007.
- [74] S. Germanis, A. Beveratos, G. E. Dialynas, G. Deligeorgis, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos, “Piezoelectric InAs/GaAs quantum dots with reduced fine-structure splitting for the generation of entangled photons,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 86, no. 035323, pp. 1–5, 2012.
- [75] L. Borkovska, T. Stara, N. Korsunskaya, L. Germash, and V. Bondarenko, “Effect of thermal annealing on the luminescent characteristics of CdSe/ZnSe quantum dot heterostructure,” *Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics*, vol. 13, no. 2, pp. 202–208, 2010.
- [76] N. Halder, S. Adhikary, and S. Chakrabarti, “Inhibition of emission wavelength blueshift in annealed InAs/GaAs quantum dot stacks: An important observation

- 
- for their potential application in photovoltaic devices,” *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, vol. 107, no. 4, pp. 977–983, 2012.
- [77] Y. H. Huo, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Ultra-small excitonic fine structure splitting in highly symmetric quantum dots on GaAs (001) substrate,” *Applied Physics Letters*, vol. 102, no. 152105, 2013.
- [78] H. Drexler, D. Leonard, and W. Hansen, “Spectroscopy of quantum levels in charge-tunable InGaAs quantum dots,” *Physical review letters*, vol. 73, no. 16, pp. 2252–2256, 1994.
- [79] S. Stobbe, J. Johansen, P. Kristensen, J. Hvam, and P. Lodahl, “Frequency dependence of the radiative decay rate of excitons in self-assembled quantum dots: Experiment and theory,” *Physical Review B*, vol. 80, p. 155307, oct 2009.
- [80] D. D. Coon and H. C. Liu, “Light–heavy-hole mixing in quantum well structures,” *Journal of Applied Physics*, vol. 60, no. 1, p. 445, 1986.
- [81] R. T. Collins, L. Vina, W. I. Wang, L. L. Chang, L. Esaki, K. V. Klitzing, and K. Ploog, “Mixing between heavy-hole and light-hole excitons in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells in an electric field,” *Physical Review B*, vol. 36, no. 3, pp. 1531–1534, 1987.
- [82] C. Tonin, R. Hostein, V. Voliotis, R. Grousson, A. Lemaitre, and A. Martinez, “Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 85, no. 15, pp. 1–10, 2012.
- [83] C. Tonin, *Manipulation cohérente de l’émission résonnante d’une boîte quantique unique*. PhD thesis, 2013.
- [84] J. D. Plumhof, R. Trotta, V. Křápek, E. Zallo, P. Atkinson, S. Kumar, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Tuning of the valence band mixing of excitons confined in GaAs/AlGaAs quantum dots via piezoelectric-induced anisotropic strain,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 87, no. 075311, pp. 1–5, 2013.
- [85] Y. H. Huo, B. J. Witek, S. Kumar, J. R. Cardenas, J. X. Zhang, N. Akopian, R. Singh, E. Zallo, R. Grifone, D. Kriegner, R. Trotta, F. Ding, J. Stangl, V. Zwiller, G. Bester, a. Rastelli, and O. G. Schmidt, “A light-hole exciton in a quantum dot,” *Nature Physics*, vol. 10, pp. 46–51, nov 2013.
- [86] J.-W. Luo, G. Bester, and A. Zunger, “Supercoupling between heavy-hole and light-hole states in nanostructures,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 165301, pp. 1–9, 2015.
-

- [87] J. Luttinger and W. Kohn, “Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields,” *Physical Review*, vol. 173, no. 1950, 1955.
- [88] G. Bir and G. Picus, “Symmetry and strain induced effects in semiconductors,” *Ed. Wiley*, 1974.
- [89] G. Bir and G. Picus, “Sov. Phys. Solid State,” p. 2221.
- [90] T. Tanaka, J. Singh, Y. Arakawa, and P. Bhattacharya, “Near band edge polarization dependence as a probe of structural symmetry in GaAs/AlGaAs quantum dot structures,” *Applied Physics Letters*, vol. 62, no. 7, pp. 756–758, 1993.
- [91] S.-S. Li, J.-B. Xia, Z. Yuan, Z. Xu, W. Ge, X. Wang, Y. Wang, J. Wang, and L. Chang, “Effective-mass theory for InAs/GaAs strained coupled quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 54, no. 16, pp. 11575–11581, 1996.
- [92] J. Fischer and D. Loss, “Hybridization and spin decoherence in heavy-hole quantum dots,” *Physical Review Letters*, vol. 105, no. 266603, pp. 1–4, 2010.
- [93] Y. H. Liao, C. C. Liao, C. H. Ku, Y. C. Chang, S. J. Cheng, M. Jo, T. Kuroda, T. Mano, M. Abbarchi, and K. Sakoda, “Geometrical impact on the optical polarization of droplet epitaxial quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 86, no. 115323, pp. 1–11, 2012.
- [94] J. G. Keizer, J. Bocquel, P. M. Koenraad, T. Mano, T. Noda, and K. Sakoda, “Atomic scale analysis of self assembled GaAs/AlGaAs quantum dots grown by droplet epitaxy,” *Applied Physics Letters*, vol. 96, no. 062101, pp. 1–3, 2010.
- [95] J. W. Luo and A. Zunger, “Geometry of epitaxial GaAs/(Al,Ga)As quantum dots as seen by excitonic spectroscopy,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 84, no. 235317, pp. 1–5, 2011.
- [96] A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Y. G. Kusrayev, and F. Henneberger, “Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 70, no. 241305(R), pp. 1–4, 2004.
- [97] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaître, J. A. Gaj, and P. Voisin, “Optical alignment and polarization conversion of the neutral-exciton spin in individual InAs/GaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 77, p. 161305, apr 2008.
- [98] S. Moehl, I. C. Robin, Y. Léger, R. André, L. Besombes, and K. Kheng, “Strong heavy-hole-light-hole mixing in CdZnSe quantum dots,” *Physica Status Solidi (B) Basic Research*, vol. 243, no. 4, pp. 849–852, 2006.

- [99] J. Fernández-Rossier, “Single-exciton spectroscopy of semimagnetic quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 73, no. 045301, pp. 1–7, 2006.
- [100] T. Belhadj, C. M. Simon, T. Amand, P. Renucci, B. Chatel, O. Krebs, A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie, and B. Urbaszek, “Controlling the polarization eigenstate of a quantum dot exciton with light,” *Physical Review Letters*, vol. 103, no. 086601, pp. 1–5, 2009.
- [101] T. Belhadj, T. Amand, A. Kunold, C.-M. M. Simon, T. Kuroda, M. Abbarchi, T. Mano, K. Sakoda, S. Kunz, X. Marie, and B. Urbaszek, “Impact of heavy hole-light hole coupling on optical selection rules in GaAs quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 051111, pp. 4–7, 2010.
- [102] D. Su, X. Dou, X. Wu, Y. Liao, P. Zhou, K. Ding, H. Ni, Z. Niu, H. Zhu, D. Jiang, and B. Sun, “Tuning exciton energy and fine-structure splitting in single InAs quantum dots by applying uniaxial stress,” *AIP Advances*, vol. 6, no. 4, pp. 4–9, 2016.
- [103] S. Kumar, E. Zallo, Y. H. Liao, P. Y. Lin, R. Trotta, P. Atkinson, J. D. Plumhof, F. Ding, B. D. Gerardot, S. J. Cheng, a. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Anomalous anticrossing of neutral exciton states in GaAs/AlGaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 89, p. 115309, mar 2014.
- [104] A. Schliwa, M. Winkelkemper, and D. Bimberg, “Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In (Ga) AsGaAs quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 76, no. 205324, pp. 1–17, 2007.
- [105] J. W. Luo, R. Singh, A. Zunger, and G. Bester, “Influence of the atomic-scale structure on the exciton fine-structure splitting in InGaAs and GaAs quantum dots in a vertical electric field,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 86, no. 161302(R), pp. 1–5, 2012.
- [106] V. Mlinar, M. Bozkurt, J. Ulloa, M. Ediger, G. Bester, A. Badolato, P. Koenraad, R. J. Warburton, and A. Zunger, “Structure of quantum dots as seen by excitonic spectroscopy versus structural characterization: Using theory to close the loop,” *Physical Review B*, vol. 80, no. 165425, pp. 1–7, 2009.
- [107] E. Ivchenko, a. Kaminski, and U. Rössler, “Heavy-light hole mixing at zinc-blende (001) interfaces under normal incidence,” *Physical Review B*, vol. 54, no. 8, pp. 5852–5859, 1996.

- [108] O. Krebs and P. Voisin, “Light-heavy hole mixing and in-plane optical anisotropy of InP-AlxIn1-xAs type-II multiquantum wells,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, no. 11, p. 7265, 2000.
- [109] A. A. Toropov, E. L. Ivchenko, O. Krebs, S. Cortez, P. Voisin, and J. L. Gentner, “Excitonic contributions to the quantum-confined Pockels effect,” *Physical Review B*, vol. 63, no. 035202, pp. 1–8, 2000.
- [110] E. Zallo, P. Atkinson, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Controlling the formation of quantum dot pairs using nanohole templates,” *Journal of Crystal Growth*, vol. 338, no. 1, pp. 232–238, 2012.
- [111] J. McFarlane, P. A. Dalgarno, B. D. Gerardot, R. H. Hadfield, R. J. Warburton, K. Karrai, A. Badolato, and P. M. Petroff, “Gigahertz bandwidth electrical control over a dark exciton-based memory bit in a single quantum dot,” *Applied Physics Letters*, vol. 94, no. 093113, pp. 1–2, 2009.
- [112] E. Poem, Y. Kodriano, C. Tradonsky, N. H. Lindner, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, and D. Gershoni, “Accessing the dark exciton with light,” *Nature Physics*, vol. 6, pp. 993–997, nov 2010.
- [113] J. Puls, M. Rabe, H.-J. Wünsche, and F. Henneberger, “Magneto-optical study of the exciton fine structure in self-assembled CdSe quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 60, no. 24, pp. R16303–R16306, 1999.
- [114] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. See, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “Time-resolved studies of single quantum dots in magnetic fields,” *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 21, no. 2-4, pp. 381–384, 2004.
- [115] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, and J. P. Reithmaier, “Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in In 0 . 60 Ga 0 . 40 As Quantum Dots B = 8T,” *Physical Review Letters*, vol. 82, pp. 22–25, 1999.
- [116] E. L. Ivchenko and G. Picus, *Superlattices and Other Heterostructures*. Springer, 1 ed., 1995.
- [117] S. N. Walck and T. L. Reinecke, “Exciton diamagnetic shift in semiconductor nanostructures,” *Physical Review B*, vol. 57, no. 15, pp. 9088–9096, 1998.
- [118] J. Puebla, E. A. Chekhovich, M. Hopkinson, P. Senellart, A. Lemaitre, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii, “Dynamic nuclear polarization in InGaAs/GaAs and GaAs/AlGaAs quantum dots under nonresonant ultralow-power optical excitation,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 88, no. 045306, pp. 1–9, 2013.



- 
- [119] D. N. Krizhanovskii, A. Ebbens, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson, “Individual neutral and charged  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 72, no. 16, pp. 8–11, 2005.
- [120] T. M. Godden, J. H. Quilter, A. J. Ramsay, Y. Wu, P. Brereton, I. J. Luxmoore, J. Puebla, A. M. Fox, and M. S. Skolnick, “Fast preparation of a single-hole spin in an InAs/GaAs quantum dot in a Voigt-geometry magnetic field,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 85, no. 155310, pp. 1–9, 2012.
- [121] A. Ulhaq, Q. Duan, E. Zallo, F. Ding, O. G. Schmidt, A. I. Tartakovskii, M. S. Skolnick, and E. A. Chekhovich, “Vanishing electron  $g$  factor and long-lived nuclear spin polarization in weakly strained nanohole-filled GaAs/AlGaAs quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 93, no. 165306, pp. 1–12, 2016.
- [122] M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and M. Gurioli, “Magneto-optical properties of excitonic complexes in GaAs self-assembled quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 81, no. 035334, pp. 1–7, 2010.
- [123] P. Tighineanu, R. S. Daveau, T. B. Lehmann, H. E. Beere, D. A. Ritchie, P. Lodahl, and S. Stobbe, “Single-photon superradiance from a quantum dot,” *arXiv:1506.05705v2 [cond-mat.mes-hall]*, pp. 1–21, 2015.
- [124] M. F. Tsai, H. Lin, C. H. Lin, S. D. Lin, S. Y. Wang, M. C. Lo, S. J. Cheng, M. C. Lee, and W. H. Chang, “Diamagnetic response of exciton complexes in semiconductor quantum dots,” *Physical Review Letters*, vol. 101, no. 267402, pp. 1–4, 2008.
- [125] T. Nakaoka, S. Tarucha, and Y. Arakawa, “Electrical tuning of the  $g$  factor of single self-assembled quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 76, no. 041301(R), pp. 1–4, 2007.
- [126] K. De Greve, P. L. McMahon, D. Press, T. D. Ladd, D. Bisping, C. Schneider, M. Kamp, L. Worschech, S. Hoeffling, A. Forchel, and Y. Yamamoto, “Coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit,” *Nature Physics*, vol. 7, no. 11, p. 5, 2011.
- [127] T. M. Godden, J. H. Quilter, A. J. Ramsay, Y. Wu, P. Brereton, S. J. Boyle, I. J. Luxmoore, J. Puebla-Nunez, A. M. Fox, and M. S. Skolnick, “Coherent optical control of the spin of a single hole in an InAs/GaAs quantum dot,” *Physical Review Letters*, vol. 108, no. 017402, pp. 1–5, 2012.
-

- [128] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, N. G. Stoltz, L. A. Coldren, and D. D. Awschalom, “Picosecond Coherent Optical Manipulation of a Single Electron Spin in a Quantum Dot,” *Science*, vol. 320, no. 5874, pp. 349–352, 2008.
- [129] J. Pingenot, C. E. Pryor, and M. E. Flatté, “Method for full bloch-sphere control of a localized spin via a single electrical gate,” *Device Research Conference - Conference Digest, DRC*, vol. 222502, pp. 225–226, 2008.
- [130] J. Pingenot, C. E. Pryor, and M. E. Flatté, “Electric-field manipulation of the Landé  $g$  tensor of a hole in an In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaAs self-assembled quantum dot,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 84, no. 195403, pp. 1–5, 2011.
- [131] A. J. Bennett, M. A. Pooley, Y. Cao, N. Sköld, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “Voltage tunability of single spin-states in a quantum dot,” *Nature Communications*, p. 7, 2013.
- [132] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kummell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, and D. Hommel, “Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 8, pp. 1780–1783, 1999.
- [133] G. Bester, S. Nair, and A. Zunger, “Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 67, no. 16, p. 161306, 2003.
- [134] M. Zieliński, Y. Don, and D. Gershoni, “Atomistic theory of dark excitons in self-assembled quantum dots of reduced symmetry,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 91, no. 085403, pp. 1–6, 2015.
- [135] S. Alon-Braitbart, E. Poem, L. Fradkin, N. Akopian, S. Vilan, E. Lifshitz, E. Ehrenfreund, D. Gershoni, B. D. Gerardot, A. Badolato, and P. M. Petroff, “Magneto optics of single photons emitted from single InAs/GaAs self-assembled quantum dots in a planar microcavity,” *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 32, no. 1-2 SPEC. ISS., pp. 127–130, 2006.
- [136] D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, R. J. Warburton, C. Scha, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff, “Optical Emission from a Charge-tunable QR,” *Letters to nature*, vol. 405, no. June, pp. 8–11, 2000.
- [137] H. J. Krenner, E. C. Clark, T. Nakaoka, M. Bichler, C. Scheurer, G. Abstreiter, and J. J. Finley, “Optically probing spin and charge interactions in a tunable artificial molecule,” *Physical Review Letters*, vol. 97, no. 076403, pp. 1–4, 2006.

- [138] M. E. Ware, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. F. Doty, A. S. Bracker, D. Gershoni, V. L. Korenev, S. C. Badescu, Y. Lyanda-Geller, and T. L. Reinecke, “Polarized fine structure in the photoluminescence excitation spectrum of a negatively charged quantum dot,” *Physical Review Letters*, vol. 95, no. 177403, pp. 1–4, 2005.
- [139] M. E. Ware, A. S. Bracker, E. Stinaff, D. Gammon, D. Gershoni, and V. L. Korenev, “Polarization spectroscopy of positive and negative trions in an InAs quantum dot,” *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 26, no. 1-4, pp. 55–58, 2005.
- [140] J. Tang, S. Cao, Y. Gao, Y. Sun, W. Geng, D. A. Williams, K. Jin, and X. Xu, “Charge state control in single InAs/GaAs quantum dots by external electric and magnetic fields,” *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 041109, pp. 1–14, 2014.
- [141] A. S. Bracker, D. Gammon, and V. L. Korenev, “Fine structure and optical pumping of spins in individual semiconductor quantum dots,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 23, no. 11, p. 114004, 2008.
- [142] L. Bouet, M. Vidal, T. Mano, N. Ha, T. Kuroda, M. V. Durnev, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, X. Marie, T. Amand, K. Sakoda, G. Wang, and B. Urbaszek, “Charge tuning in [111] grown GaAs droplet quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 105, p. 082111, aug 2014.
- [143] M. V. Durnev, M. Vidal, L. Bouet, T. Amand, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, P. Zhou, G. Wang, T. Mano, N. Ha, T. Kuroda, X. Marie, K. Sakoda, and B. Urbaszek, “Magnetospectroscopy of excited states in charge-tunable GaAs/AlGaAs [111] quantum dots,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 93, no. 245412, pp. 1–11, 2016.
- [144] B. Eble, *Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d ’ InAs / GaAs sous pompage optique orienté*. PhD thesis, 2007.
- [145] J. Canet-Ferrer, G. Munoz-Matutano, J. Herranz, D. Rivas, B. Alen, Y. Gonzalez, D. Fuster, L. Gonzalez, and J. Martinez-Pastor, “Exciton and multiexciton optical properties of single InAs/GaAs site-controlled quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 183112, 2013.
- [146] L. He and A. Zunger, “Electronic structures of InGaAs/GaAs quantum dot molecules mad of dots with dissimilar sizes,” *Physical Review B*, vol. 75, no. 7, p. 075330, 2007.
- [147] A. B. De La Giroday, N. Sköld, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “Excitonic couplings and Stark effect in individual quantum dot molecules,” *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 083511, 2011.

- [148] A. K. Hüttel, S. Ludwig, H. Lorenz, K. Eberl, and J. P. Kotthaus, “Molecular states in a one-electron double quantum dot,” *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 34, no. 1-2, pp. 488–492, 2006.
- [149] M. H. Degani, G. A. Farias, and P. F. Farinas, “Dynamics of excitons and Coulomb beats in a quantum dot molecule,” *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 152109, 2006.
- [150] M. Scheibner, M. F. Doty, I. V. Ponomarev, A. S. Bracker, E. A. Stina, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, D. Gammon, E. A. Stinaff, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, D. Gammon, E. A. Stina, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, D. Gammon, E. A. Stinaff, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, and D. Gammon, “Spin Fine Structure in Optically Excited Quantum Dot Molecules,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 75, no. 245318, pp. 1–6, 2007.
- [151] A. Greulich, D. Kim, A. S. Bracker, and D. Gammon, “Optical measurement and modeling of interactions between two hole or two electron spins in coupled InAs quantum dots,” *arXiv:1209.0920*, pp. 1–5, 2013.
- [152] E. Zallo, R. Trotta, V. Křápek, Y. H. Huo, P. Atkinson, F. Ding, T. Šikola, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, “Strain-induced active tuning of the coherent tunneling in quantum dot molecules,” *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. 89, no. 241303(R), pp. 1–5, 2014.
- [153] M. Scheibner, M. Yakes, a. S. Bracker, I. V. Ponomarev, M. F. Doty, C. S. Hellberg, L. J. Whitman, T. L. Reinecke, and D. Gammon, “Optically mapping the electronic structure of coupled quantum dots,” *Nature Physics*, vol. 4, no. 4, pp. 291–295, 2008.
- [154] W. Spicer, N. Newman, J. Spindt, Z. Liliental-Weber, and E. R. Weber, “"pinning" and Fermi level movement at GaAs surfaces and interfaces,” *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 8, no. 3, p. 2084, 1989.
- [155] M. Scheibner, I. V. Ponomarev, E. A. Stinaff, M. F. Doty, A. S. Bracker, C. S. Hellberg, T. L. Reinecke, and D. Gammon, “Photoluminescence spectroscopy of the molecular biexciton in vertically stacked InAs-GaAs quantum dot pairs,” *Physical Review Letters*, vol. 99, no. 197402, pp. 1–4, 2007.
- [156] A. Boyer De La Giroday, N. Skold, R. M. Stevenson, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “Exciton-spin memory with a semiconductor quantum dot molecule,” *Physical Review Letters*, vol. 106, no. 216802, pp. 1–4, 2011.

- [157] M. Doty, J. Climente, M. Korkusinski, M. Scheibner, A. Bracker, P. Hawrylak, and D. Gammon, “Antibonding Ground States in InAs Quantum-Dot Molecules,” *Physical Review Letters*, vol. 102, p. 047401, jan 2009.
- [158] A. S. Bracker, M. Scheibner, M. F. Doty, E. A. Stinaff, I. V. Ponomarev, J. C. Kim, L. J. Whitman, T. L. Reinecke, and D. Gammon, “Engineering electron and hole tunneling with asymmetric InAs quantum dot molecules,” *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 233110, pp. 1–4, 2006.