

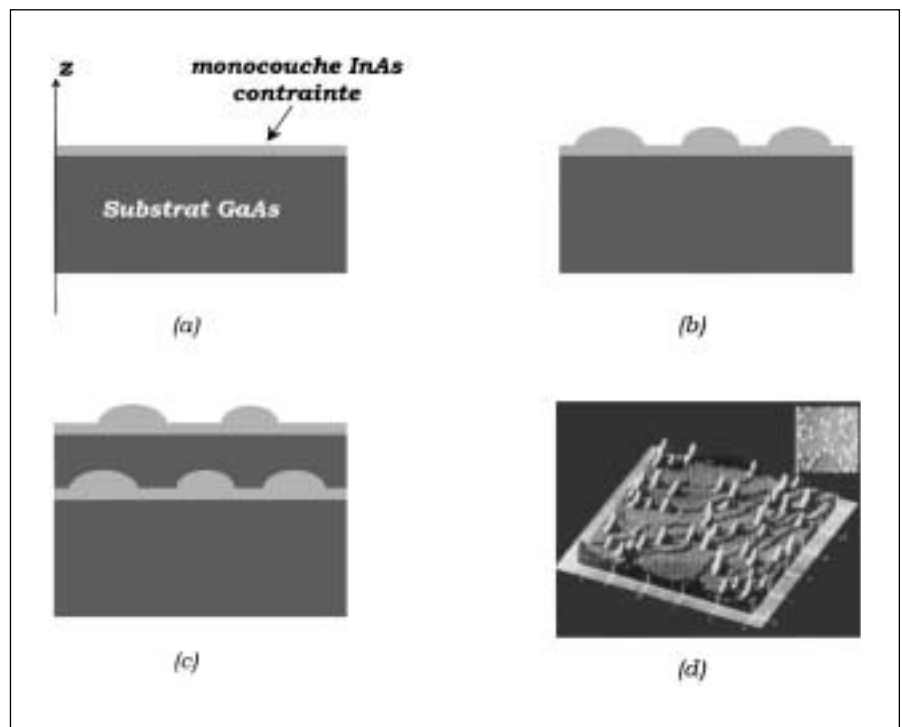
## Matériaux de basse dimensionnalité

# Les boîtes quantiques semi-conductrices : des atomes artificiels en couplage fort avec le réseau

*Bien que les boîtes quantiques de semiconducteur présentent des niveaux électroniques discrets, elles sont pourtant très différentes des atomes. Nous montrons que l'interaction entre les électrons et les modes de vibrations optiques présente dans ces objets nanométriques un caractère unique en physique des semiconducteurs, celui d'un régime de couplage fort. Les excitations élémentaires d'une boîte quantique, les polarons, mises en évidence par magnéto-spectroscopie dans l'infrarouge lointain, sont à la base d'une meilleure compréhension de la réponse optique et des processus de relaxation de l'énergie impliquant les porteurs confinés dans ces nano-objets.*

Les boîtes quantiques à base de semiconducteurs réalisées par croissance auto-organisée font actuellement l'objet de nombreuses études. Cela tient, d'une part, à leurs utilisations potentielles (lasers, photo-détecteurs, mémoires, ...) et, d'autre part, à la nature particulière de leurs états électroniques.

Une boîte quantique est obtenue lorsque l'on fait croître par épitaxie un semiconducteur (A) sur un substrat formé d'un autre semiconducteur (B), quand le désaccord de paramètre de maille entre les deux est assez grand (typiquement au-delà de quelques %). Initialement, la croissance est bidimensionnelle et engendre une couche mince (couche de mouillage) de matériau A sur le substrat. Au-delà d'une épaisseur critique (typiquement quelques monocouches), la croissance change de régime et l'on observe la formation spontanée (ou auto-organisée) d'îlots de matériau A sur la couche de mouillage. La reprise de la croissance permet de finir la structure avec une couche épaisse de matériau du substrat. On obtient un ensemble d'îlots de matériau A, posés sur une couche très mince de même compo-



**Figure 1** - Illustration de la croissance auto-organisée de boîtes quantiques de InAs (matériau A) sur GaAs (matériau B),  $z$  étant l'axe de croissance. (a) La croissance est initialement bidimensionnelle. La monocouche épitaxiée est en compression dans le plan  $(x,y)$ . (b) La contrainte est relaxée par la formation spontanée d'îlots, la croissance devient tridimensionnelle. (c) Les îlots de InAs sont recouverts d'une couche de GaAs et la croissance de InAs est reprise. La formation d'un deuxième plan d'îlots apparaît. Sur ce schéma, la couche de GaAs est assez épaisse, les îlots sont alors disposés de façon aléatoire d'un plan à l'autre. (d) Image réalisée par AFM sur un plan d'îlots de InAs (échelle verticale agrandie de 100 fois par rapport à celle latérale). L'insert carré en haut à droite de la figure (d) représente une vue du dessus.

sition et enterrés dans du matériau B (figure 1). Il faut souligner quelques caractéristiques de ces îlots de semiconducteurs. Dans le cas de InAs (matériau A) dans du GaAs (maté-

riau B), les îlots ont la forme de lentilles très aplaties : rayon à la base  $R \approx 100 \text{ \AA}$  et hauteur  $h \approx 20 - 30 \text{ \AA}$ . Les matériaux sont choisis de telle façon que, du point de vue énergé-

– Laboratoire de physique de la matière condensée (LPMC), UMR 8551 CNRS, universités Paris 6 et Paris 7, ENS, 24 rue Lhomond, 75231 Paris cedex 05.

tique,  $A$  soit plus attractif que  $B$  pour les électrons. L'existence d'un potentiel attractif tridimensionnel dans une région de dimension nanométrique donne lieu à des effets quantiques : les premiers états électroniques forment un ensemble discret d'états bien séparés en énergie et fortement localisés dans la région des îlots. On parle ainsi de *boîtes quantiques de semiconducteurs*. Pour un électron dans une boîte InAs/GaAs, la séparation énergétique entre le niveau fondamental et le premier niveau excité est typiquement  $\Delta E \approx 50$  meV pour la bande de conduction. La réalisation pratique d'un système de boîtes contenant chacune un électron est possible en utilisant un dopage sélectif de type  $n$  du matériau barrière  $B$ , au voisinage du plan des îlots : les électrons des donneurs transfèrent alors naturellement dans les boîtes. De plus, la densité surfacique d'îlots est telle que la distance moyenne entre boîtes est bien supérieure au diamètre de ces dernières. On parle ainsi d'un ensemble de boîtes quantiques isolées (figure 1).

Dans la littérature, on associe souvent une boîte unique comportant un électron à un atome artificiel. Une telle analogie est basée principalement sur la séquence discrète des premiers niveaux électroniques des boîtes. Nous avons récemment étudié l'absorption optique en champ magnétique dans le domaine infrarouge  $h\nu \approx \Delta E$ , faisant intervenir l'excitation des électrons confinés dans les boîtes quantiques isolées. Les résultats démontrent clairement qu'une analogie aussi simple avec des atomes doit être profondément révisée : la raison en est l'existence même du réseau cristallin, et l'interaction tout à fait particulière de l'électron confiné avec les modes de vibrations de ce réseau (les phonons). Dans la suite de cet article, nous décrivons d'abord les prédictions d'un modèle purement électronique pour la magnéto-absorption des « atomes artificiels » de semiconducteurs. Ensuite, nous

discuterons les résultats des expériences réalisées dans le système InAs/GaAs. Finalement, nous présenterons les bases d'un modèle théorique plus réaliste qui nous permettra, d'une part, de souligner le caractère particulier de l'interaction électron-phonon dans une boîte et, d'autre part, de décrire comment cette interaction affecte le processus d'absorption infrarouge et la relaxation énergétique de l'électron.

### MAGNÉTO-ABSORPTION DES BOÎTES QUANTIQUES : PRÉVISIONS DU MODÈLE D'ATOMES ARTIFICIELS

Nous nous intéresserons ici à des boîtes contenant 1 électron confiné. La forme des îlots et donc le potentiel confinant sont pratiquement à symétrie cylindrique. Les fonctions propres de l'électron piégé dans une boîte quantique sont alors également fonctions propres de  $L_z$ , projection du moment cinétique orbital le long de l'axe de croissance ( $L_z\Psi = \hbar\ell_z\Psi$ ). Les états liés sont notés  $nS$ ,  $nP_{\pm}$ , ..., avec  $n \geq 1$ , où l'entier  $n - 1$  est le nombre de nœuds de la fonction associée au mouvement radial et  $S$ ,  $P_{\pm}$ , ... rappellent que l'on a affaire à des états de  $\ell_z = 0$ ,  $\ell_z = \pm 1$ , ... bien définis. Il faudrait en principe un autre nombre quantique pour repérer le mouvement le long de l'axe  $z$ . En réalité, les boîtes ayant un grand rapport d'aspect ( $R/h \gg 1$ ), l'énergie de confinement en  $z$  est bien plus grande que celle associée au mouvement radial et, en pratique, il n'existe (pour les électrons dans le système InAs/GaAs) qu'un seul état lié en  $z$ . Ainsi, la nature des états électroniques des boîtes est analogue à celle que l'on rencontrerait dans un atome plat. Avec une masse effective de conduction  $m^*$  de l'ordre de  $0.07m_0$ , on constate que l'énergie séparant l'état fondamental ( $1S$ ) des premiers états excités ( $1P_{\pm}$ ) est de l'ordre de 50 meV. Cette énergie correspond à des longueurs d'onde lumineuses dans l'infrarouge lointain ( $\lambda \approx 25 \mu\text{m}$ ).

Dans la pratique, on est à même de modifier considérablement l'énergie des transitions électroniques par l'application d'un champ magnétique  $\mathbf{B}$  intense le long de l'axe  $z$ . Comme dans les atomes, on doit prendre en compte dans le calcul de l'énergie des états liés les termes Zeeman orbitaux du premier ordre,  $\hbar\omega_c L_z/2$  et du second ordre,  $m^* (\omega_c/2)^2 (x^2 + y^2)/2$ , où  $\omega_c = eB/m^*$  est la pulsation cyclotron des électrons. Le terme principal est le terme linéaire qui n'affecte pas les états  $S$  mais lève la dégénérescence des états  $P$  :  $E_{1P+} - E_{1P-} = \hbar\omega_c$  ( $\approx 17$  meV pour un champ de 10 Tesla). L'effet Zeeman associé au spin de l'électron est négligeable.

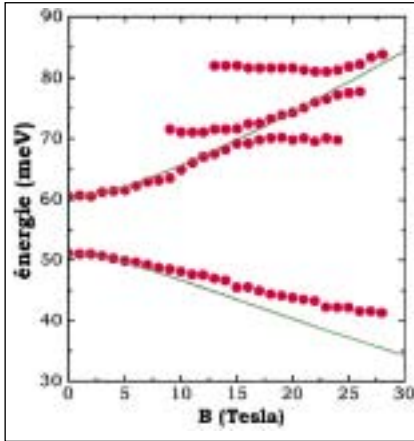
A basse température (10 K par exemple), l'électron occupe le niveau fondamental  $1S$  de la boîte. Supposons que l'on dispose d'un ensemble de boîtes quantiques soumis à un champ magnétique  $\mathbf{B} // z$ . Une onde électromagnétique de fréquence  $\omega$  se propageant le long de l'axe  $z$  sera absorbée lorsque l'énergie des photons  $\hbar\omega$  coïncidera avec la distance énergétique entre l'état fondamental  $1S$  et les états excités  $1P_{\pm}$  :

$$\hbar\omega_{\pm}(B) = \hbar\omega_{\pm}(0) \pm (1/2)\hbar\omega_c + \gamma B^2 \quad (1)$$

où  $\hbar\omega_{\pm}(0) = E_{1P_{\pm}}(0) - E_{1S}(0)$  est l'écartement à champ nul entre état fondamental et états excités. Le dernier terme dû aux corrections diamagnétiques demeurant petit, l'observation des transitions magnéto-optiques, donc la mesure de  $\omega_{\pm}(B)$ , permet de déterminer  $m^*$ .

### MAGNÉTO-ABSORPTION DES BOÎTES QUANTIQUES : RÉSULTATS EXPERIMENTAUX

La figure 2 présente la dépendance  $\hbar\omega(B)$  obtenue dans une expérience de magnéto-transmission effectuée au LCMI de Grenoble sur des multi-plans de boîtes quantiques InAs/GaAs dopées fabriquées au CNET Bagnaux. Les plans contiennent



**Figure 2** - Cercles : énergies des résonances de magnéto-transmission d'un ensemble de boîtes quantiques isolées de InAs/GaAs dopées. Courbes : meilleur ajustement obtenu à partir du modèle purement électronique (équation 2).

ment  $\sim 4 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$  boîtes peuplées en moyenne par 1 électron. L'échantillon contient 30 plans séparés de 50 nm pour accroître l'absorption de la lumière (de l'ordre de 0.3 % par plan). La distance moyenne entre boîtes tant dans le plan que verticalement exclut tout effet tunnel inter-boîtes, ce qui justifie l'image d'un ensemble de boîtes quantiques isolées.

On note l'apparition de deux raies à  $B = 0$  au lieu d'une prévue. Cela s'explique si l'on suppose que la forme des îlots, et donc le potentiel de confinement, n'est pas parfaitement circulaire dans le plan, mais présente une elongation dans la direction  $[1, -1, 0]$  levant la dégénérescence des états  $1P_+$  et  $1P_-$ . Il a été vérifié que ces deux raies sont polarisées linéairement le long des directions  $[110]$  et  $[1 - 10]$  dans le plan, ce qui démontre que l'anisotropie de forme est la même pour chaque boîte (des axes privilégiés variant aléatoirement d'une boîte à l'autre auraient conduit à une absorption optique isotrope). Un modèle simple d'anisotropie (un couplage d'intensité  $\delta/2$  entre  $|1P_+\rangle$  et  $|1P_-\rangle$  conduit à deux nouveaux états électroniques (pour lesquels on gardera la notation  $|1P_+\rangle$  et  $|1P_-\rangle$ ) et à des énergies

$\hbar\Omega_{\pm}(B)$  des transitions magnéto-optiques variant comme :

$$\hbar\Omega_{\pm}(B) = \hbar\omega_{\pm}(0) \pm (1/2)[\delta^2 + (\hbar\omega_c)^2]^{1/2} + \gamma B^2 \quad (2)$$

Ce modèle purement électronique prévoit l'existence de deux branches miroirs en champ, une ascendante et une descendante. Sur la figure 2, les courbes représentent le meilleur ajustement obtenu en variant les paramètres  $\hbar\omega_{\pm}(0)$ ,  $\delta$  et  $\omega_c$ . La comparaison avec les résultats expérimentaux montre que ce modèle d'atome artificiel est incapable de reproduire les principales tendances expérimentales : il prévoit une branche descendante de pente beaucoup trop importante par rapport à celle mesurée et ne permet pas de décrire les anticroisements observés sur la branche ascendante.

Dans la suite, nous montrerons que l'interprétation des résultats expérimentaux impose de tenir compte du couplage entre électrons confinés et vibrations du réseau cristallin. Plus précisément, nous discuterons le rôle particulier joué par les vibrations longitudinales optiques (LO). Une première manifestation apparaît quand on considère plus en détail les résultats expérimentaux. On note sur la figure 2 que l'anticroisement vers 17 T se produit lorsque la branche ascendante est telle que  $\hbar\Omega_+(B) = E_{1P_+}(B) - E_{1S}(B) \sim 2\hbar\omega_{LO}$ , où  $\hbar\omega_{LO} \sim 36 \text{ meV}$  est l'énergie d'un phonon optique de GaAs ou de InAs contraint. Également, l'anticroisement vers 25 T se produit lorsque les branches ascendante et descendante sont séparées d'un phonon optique :  $E_{1P_+}(B) - E_{1P_-}(B) \sim \hbar\omega_{LO}$ . Enfin, la déviation considérable de la branche  $\Omega_-(B)$  par rapport au comportement prévu peut être associée à l'existence d'un important couplage électron-phonon lorsque l'énergie de la branche descendante s'approche d'un phonon optique :  $E_{1P_-}(B) - E_{1S}(B) \sim \hbar\omega_{LO}$ . Des résultats similaires, obtenus sur d'autres échantillons, confirment

que les déviations importantes par rapport au modèle purement électronique sont toujours observées lorsque l'écart entre deux niveaux  $S$  ou  $P$  devient de l'ordre de  $\hbar\omega_{LO}$  ou  $2\hbar\omega_{LO}$ .

### NATURE DU COUPLAGE ELECTRON - PHONON LO : DU SEMICONDUCTEUR MASSIF AUX BOÎTES QUANTIQUES

Des anticroisements à 1 phonon dans la dispersion des transitions magnéto-optiques avaient déjà été observés depuis longtemps dans les semiconducteurs massifs III-V ou les puits quantiques, mais ils étaient d'amplitude beaucoup plus faible et observés sur une gamme de champ magnétique très petite ( $< 1 \text{ T}$ ), alors que cette gamme peut atteindre jusqu'à 30 T dans nos expériences. Par ailleurs, aucun anticroisement à 2 phonons n'avait jamais été observé en magnéto-absorption dans les semiconducteurs. Cela confirme la nature particulière du couplage électron-phonon dans les boîtes quantiques, qui diffère de celui qui prévaut dans les semiconducteurs massifs ou les puits quantiques.

Pour décrire ce couplage, on notera  $|\nu\rangle$  un état purement électronique et  $E_{\nu}$  son énergie. Dans un semiconducteur massif  $\nu \equiv \mathbf{k}$  (vecteur d'onde de l'électron), tandis que  $\nu \equiv \{1S, 1P_-, \dots\}$  pour les premiers états discrets des boîtes quantiques. L'état du réseau est spécifié par l'ensemble  $|\{n_{\mathbf{q}}\}\rangle$ , où  $n_{\mathbf{q}}$  représente  $n$  phonons dans le mode vibrationnel optique de vecteur d'onde  $\mathbf{q}$ . On notera de façon générale  $|n_{\text{ph}}\rangle$  un état quelconque à  $n$  phonons. L'origine physique de l'interaction électron-phonon LO est bien connue depuis les travaux de H. Fröhlich dans les années 50. Les modes optiques du cristal sont dus aux vibrations en opposition de phase des deux atomes qui constituent le motif de chacune des cellules élémentaires du cristal (In et As ou Ga et As). La liaison entre ces deux atomes étant

légèrement polaire, elle engendre un dipôle élémentaire oscillant à l'intérieur de chaque cellule unitaire. Une particule chargée (ici l'électron de la boîte) interagit alors avec le champ engendré par tous les dipôles élémentaires oscillants associés aux modes longitudinaux optiques de vibration. A cause de ce couplage, l'état électronique et l'état de vibration du cristal ne sont plus indépendants, et les états du système sont décrits comme des combinaisons linéaires de tous les états découplés  $|\text{état électronique}\rangle \otimes |\text{mode de vibration}\rangle$  possibles. En particulier, un état découplé donné  $|v^*\rangle \otimes |n_{\text{ph}}^*\rangle$ , avec l'électron dans un état  $|v^*\rangle$  bien défini et le réseau dans un mode de vibration particulier à  $n^*$  phonons, n'est pas un état propre du système, mais est couplé aux autres états non perturbés  $\{|v\rangle \otimes |n_{\text{ph}}\rangle\}$ . Dans la suite, nous discuterons quelques conséquences du mélange, induit par le couplage électron-phonon, à l'intérieur de l'ensemble d'états découplés. Pour cela, il faut bien sûr préciser pour chaque cas (matériaux massifs, boîtes quantiques, ...) l'ensemble des états électroniques et des modes de vibrations mis en jeu.

Tout d'abord, dans un semiconducteur massif la fréquence  $\omega_{\text{LO}}$  d'oscillation des dipôles dépend du vecteur d'onde  $\mathbf{q}$  de la vibration optique, mais la dispersion  $\omega_{\text{LO}}(\mathbf{q})$  est très faible (quelques meV). De plus, il se trouve que les électrons se couplent préférentiellement avec les modes à grande longueur d'onde, restreignant encore la largeur énergétique effective du continuum des modes de vibration optiques à une fraction de meV. Pour GaAs, on a ainsi  $\hbar\omega_{\text{LO}}(\mathbf{q}) \approx 36$  meV. En ce qui concerne les états électroniques, on a affaire en revanche à un continuum d'états propagatifs très large (bande de conduction de largeur  $\sim$  quelques eV). Ainsi, l'ensemble d'états  $\{|\mathbf{k}\rangle \otimes |n_{\text{ph}}\rangle\}$  forme un continuum très large essentiellement à cause du

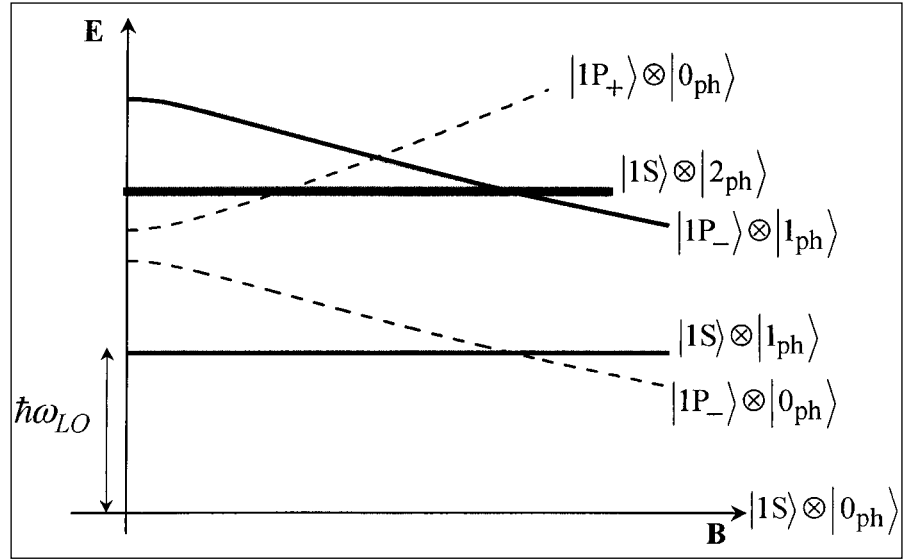


Figure 3 - Représentation schématique de la variation avec le champ magnétique des premiers niveaux non perturbés des boîtes.

continuum électronique. Si l'on considère l'évolution temporelle à l'intérieur de cet ensemble, à partir de l'état non perturbé particulier  $|\mathbf{k}^*\rangle \otimes |n_{\text{ph}}^*\rangle$ , on trouve que le système évolue de façon irréversible vers des états caractérisant l'émission ou l'absorption ( $n_{\text{ph}} = n_{\text{ph}}^* \pm 1$  et  $E_{\mathbf{k}} = E_{\mathbf{k}^*} \mp \hbar\omega_{\text{LO}}$ ) d'un phonon optique. Par irréversible, on entend une probabilité négligeable pour que le même phonon soit émis (absorbé) et re-absorbé (re-émis) à répétition, renvoyant systématiquement le système {électron + phonons LO} dans le même état initial non perturbé. Autrement dit, la probabilité de survie  $P(t)$  dans l'état initial sera une exponentielle décroissante  $\exp(-t/\tau)$ , où  $1/\tau$  est donné par la règle d'or de Fermi. Ce comportement caractérise un régime de couplage faible. Il faut noter que ce couplage faible est néanmoins très efficace pour la relaxation en énergie des porteurs, puisqu'à température ambiante  $\tau < 1$  ps pour un électron proche du bas de la bande de conduction et il est bien connu que l'émission irréversible de phonons optiques est de loin le mécanisme dominant de perte d'énergie pour les porteurs dans les semiconducteurs massifs.

Dans le cas des boîtes quantiques, les premiers niveaux électroniques sont discrets et séparés par une distance énergétique bien plus grande que la largeur du continuum de phonon. Les états non perturbés du système {électron + vibrations LO} forment alors des continums étroits attachés à chaque niveau électronique discret. Cela a des conséquences profondes sur le couplage électron-phonon dans les boîtes quantiques. La figure 3 montre les premiers niveaux non perturbés des boîtes étudiées expérimentalement en fonction du champ magnétique appliqué  $B$ . Dans l'état fondamental  $|1S\rangle \otimes |0_{\text{ph}}\rangle$  l'électron se trouve dans l'état  $1S$  et le réseau dans l'état à zéro phonon. A  $B = 0$ , la distance énergétique entre les niveaux liés  $1S$  et  $1P_{\pm}$  étant supérieure à l'énergie d'un phonon optique, les premiers états excités sont ceux où, par rapport au niveau fondamental, le réseau est excité une fois (états à un phonon) :  $|1S\rangle \otimes |1_{\text{ph}}\rangle$ . Ensuite, on a les états  $|1P_{\pm}\rangle \otimes |0_{\text{ph}}\rangle$  et, dans l'ordre, le continuum d'états à deux phonons  $|1S\rangle \otimes |2_{\text{ph}}\rangle$  puis  $|1P_{-}\rangle \otimes |1_{\text{ph}}\rangle$ . Sur la figure 3,

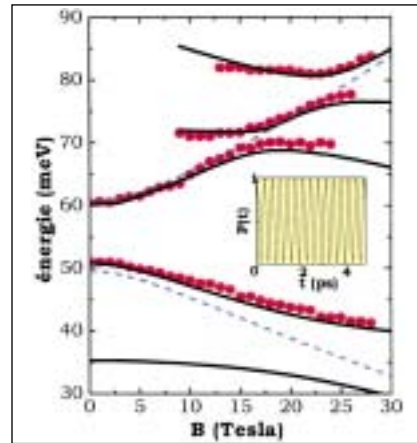
les différentes largeurs de trait rappellent que les niveaux à zéro phonon sont des états discrets, ceux à un phonon comprennent la faible dispersion des modes optiques, l'ensemble à deux phonons étant deux fois plus large que celui à un phonon, ... Les niveaux non perturbés associés à l'état  $1S$  varient peu avec le champ, tandis que les niveaux associés à  $1P_{\pm}$  présentent les variations ascendante et descendante discutées auparavant. On note l'existence de croisements entre les différents états non perturbés. La prise en compte de l'interaction électron-phonon change de façon profonde le schéma simple de la figure 3.

#### ÉTATS DE POLARONS DES BOÎTES QUANTIQUES

Quand on effectue un traitement exact du couplage électron-phonon dans la base tronquée

$\{|1S\rangle \otimes |0_{ph}\rangle ; |1S\rangle \otimes |1_{ph}\rangle ; |1S\rangle \otimes |2_{ph}\rangle ; |1P_{\pm}\rangle \otimes |0_{ph}\rangle ; |1P_{\pm}\rangle \otimes |1_{ph}\rangle\}$ , on trouve que les états résultant de la diagonalisation du couplage de Fröhlich sont, par construction, des combinaisons linéaires des états de base non perturbés, et donc à caractère mixte. Ces états intriqués sont les états **polarons**, pour lesquels un découplage du type |état électronique  $\rangle \otimes$  |état de vibration  $\rangle$  est *a priori* impossible. A partir de ces états polarons, le coefficient d'absorption intra-bande peut être calculé. Pour cela, on note que :

*i)* l'état fondamental mélangé est formé essentiellement de l'état fondamental non perturbé à zéro phonon  $|1S\rangle \otimes |0_{ph}\rangle$ , bien isolé des autres ; *ii)* le couplage dipolaire de l'électron avec la lumière (que l'on peut associer à une faible perturbation) couple seulement les états liés de symétrie  $S$  et  $P_{\pm}$  et conserve, bien sûr, le nombre de phonons. Il s'ensuit que l'absorption vers un niveau excité est proportionnelle au poids (module carré) des composantes à zéro phonon



**Figure 4** - Variations avec le champ magnétique des énergies de transitions magnéto-optiques calculées en négligeant (traits pointillés) ou en prenant en compte (traits continus) le couplage électron-phonon, pour les mêmes paramètres d'ajustement  $\hbar\omega_{\pm}(0)$ ,  $\delta$  et  $\omega_c$ . Encart : Probabilité de survie calculée de l'état initial  $|1P_{\pm}\rangle \otimes |0_{ph}\rangle$ .

$|1P_{\pm}\rangle \otimes |0_{ph}\rangle$  de ce niveau. Les courbes en traits pleins sur la figure 4 donnent les variations avec le champ magnétique des énergies de transition pour les états de polaron ayant un poids sur les états de base  $|1P_{\pm}\rangle \otimes |0_{ph}\rangle$  plus grand que 10 %. On voit que l'accord avec les données expérimentales est excellent. Cela est à comparer aux résultats obtenus avec les mêmes paramètres  $\hbar\omega_{\pm}(0)$ ,  $\delta$  et  $\omega_c$  et en négligeant le couplage de Fröhlich (traits pointillés). Pour tout champ magnétique, la différence entre les deux calculs souligne la contribution de l'interaction électron-phonon et démontre de manière spectaculaire l'importance du couplage de l'électron avec les vibrations du réseau.

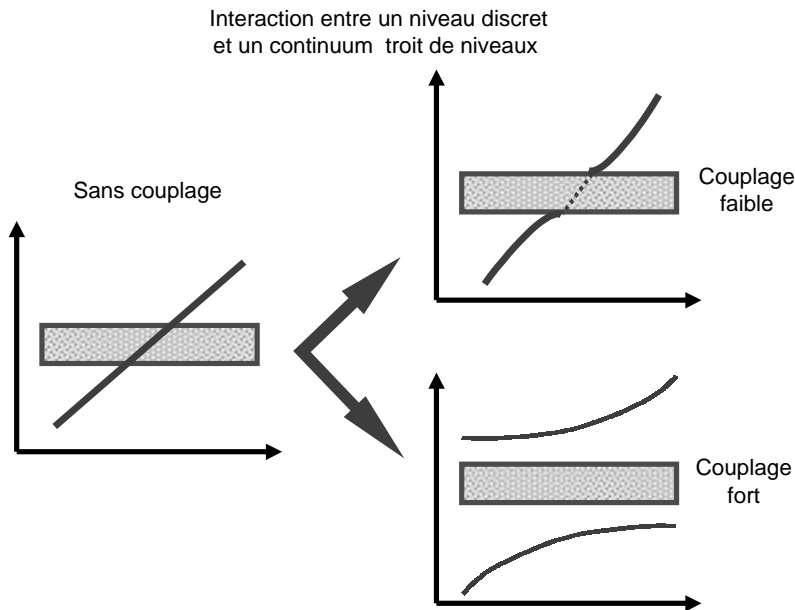
On note que chacun des croisements sur la figure 3 met en jeu un niveau discret et un continuum d'états non perturbés (ensemble à un ou à deux phonons). D'une manière générale, il est connu en mécanique quantique que l'on obtient différents régimes physiques lorsque l'on fait interagir un niveau discret avec un continuum de largeur finie, selon la valeur du rapport  $\eta = \vartheta/\Delta$ , où  $\vartheta$  est la force de couplage entre le niveau discret et les états du continuum et

$\Delta$  la largeur du continuum. On considère dans un premier temps la situation résonnante (niveau discret placé à l'intérieur du continuum). Dans le cas  $\eta \ll 1$ , l'interaction introduit deux corrections à l'énergie du niveau discret non perturbé : d'une part, une correction réelle (déplacement en énergie) négligeable au regard de la largeur du continuum et, d'autre part, une correction imaginaire (temps de vie fini). Dans les boîtes quantiques, nous sommes plutôt dans le cas  $\eta \gg 1$ , qui diffère du précédent en deux points. D'une part, le continuum « s'organise », dans le sens que le niveau discret est couplé de manière prépondérante avec un niveau « moyen » du continuum, combinaison linéaire des niveaux non perturbés. D'autre part, les déplacements réels résultant de l'interaction entre le niveau discret et le niveau « moyen » sont non négligeables en regard de la largeur du continuum, tandis que les corrections imaginaires correspondantes s'annulent. Si l'on suppose maintenant que l'énergie du niveau discret peut être balayée autour du continuum à l'aide d'un paramètre de contrôle extérieur (comme le champ magnétique dans les expériences de magnéto-optique), on obtient deux situations physiques radicalement différentes : en couplage « faible » ( $\eta \ll 1$ ), le niveau discret non perturbé entre dans le continuum (à l'intérieur duquel il se dissout), tandis qu'en couplage « fort » ( $\eta \gg 1$ ), l'interaction entre le niveau discret et le niveau « moyen » engendre une courbe d'anticroisement en fonction du paramètre de contrôle extérieur (encadré 1).

Ces résultats généraux s'appliquent aisément au cas spécifique de l'interaction électron-phonon dans les boîtes quantiques. Pour la structure étudiée expérimentalement, chacune des deux résonances induites par le champ entre un niveau discret à zéro phonon avec un continuum à un phonon (vers 25 T entre  $|1P_{+}\rangle \otimes |0_{ph}\rangle$  et  $|1P_{-}\rangle \otimes |1_{ph}\rangle$  et vers 30 T entre

## Encadré 1

### INTERACTION ENTRE UN NIVEAU DISCRET ET UN CONTINUUM ÉTROIT DE NIVEAUX



$|1P_- \rangle \otimes |0_{ph} \rangle$  et  $|1S \rangle \otimes |1_{ph} \rangle$ , figure 3), est analysée séparément en termes d'un anticroisement à cause du couplage de Fröhlich. Il faut toutefois rappeler que le mélange entre l'état à zéro phonon  $|1P_{\pm} \rangle \otimes |0_{ph} \rangle$  de la branche ascendante et les états  $|1S \rangle \otimes |2_{ph} \rangle$  à deux phonons est indirect, c'est-à-dire, possible seulement en présence de niveaux à un phonon qui, dans un traitement au deuxième ordre, jouent le rôle de niveaux relais.

Il est important de souligner l'évolution temporelle du système total à partir d'un état initial non perturbé, par exemple celui à zéro phonon de la branche descendante  $|1P_- \rangle \otimes |0_{ph} \rangle$ , couplé au continuum  $|1S \rangle \otimes |1_{ph} \rangle$ . Le système électron-phonon s'étant réorganisé, ce problème à grand nombre de niveaux est remplacé par un pro-

blème effectif à deux niveaux : le niveau discret initial et le niveau « moyen » du continuum. Il s'ensuit que la probabilité de survie de l'état initial oscille avec le temps (oscillations de Rabi ; voir encart de la figure 4) et la notion d'émission d'un phonon LO par l'électron dans l'état excité  $|1P_- \rangle$  pour relaxer vers l'état  $|1S \rangle$  devient caduque. La vision correcte de l'interaction électron-phonon LO dans une boîte quantique est celle d'un électron qui émet et re-absorbe des phonons optiques continuellement et de façon cohérente. Ce régime de couplage fort est tout à fait analogue à celui de l'électrodynamique en cavité, où la discrétisation des modes du champ électromagnétique en un mode  $|\mathcal{E}_{cav} \rangle$  rend impossible l'émission spontanée de photons par un atome dans un état excité  $|E_{ato-exc} \rangle$  vers

son niveau fondamental  $|E_{ato-fon} \rangle$  et la remplace par des oscillations de Rabi entre les deux états  $|E_{ato-fon} \rangle \otimes |\mathcal{E}_{cav} \rangle$  et  $|E_{ato-exc} \rangle \otimes |0_{photons} \rangle$ . Ces oscillations sont le pendant temporel des nouveaux états stationnaires mixtes (intriqués) électron-phonon. Notons qu'en valeur relative, l'effet de couplage fort est beaucoup plus grand dans le cas des polarons des boîtes quantiques que dans les atomes puisque le rapport (taille de l'anticroisement) / (séparation énergétique entre niveaux électroniques) est de l'ordre de  $\approx 10 - 20 \%$  dans les boîtes quantiques, à comparer aux  $\approx 10^{-6}$  des atomes en cavité. Finalement, une autre analogie peut être faite en physique des semiconducteurs, où l'interaction en régime de couplage fort entre les excitons dans un puits quantique inséré dans une microcavité semi-conductrice et le mode électromagnétique confiné de celle-ci mène à la formation de polaritons de cavité.

#### CONSÉQUENCES ET CONCLUSION

Les conséquences de l'existence de polarons dans les boîtes quantiques sont importantes. En premier lieu, le fait que l'excitation élémentaire qui décrit le plus correctement le système électron-phonon est très différente de celle à laquelle nous sommes accoutumés : un électron essentiellement découplé des vibrations et qui émet (ou absorbe) irréversiblement un quantum de vibration.

Un re-examen des propriétés optiques des boîtes quantiques s'impose : le polaron étant une entité stable (infiniment stable dans les modèles décrits ci-dessus) implique que ce sont ces états mixtes et non les électrons qui émettent ou absorbent des photons. Les résultats décrits ici montrent clairement comment l'effet polaron modifie l'absorption intrabande des boîtes quantiques.

L'existence de polarons robustes implique également un re-examen des mécanismes de relaxation de l'énergie : puisque les polarons exis-

## Encadré 2

# INTERACTION ÉLECTRON-PHONON DANS LES SEMICONDUCTEURS

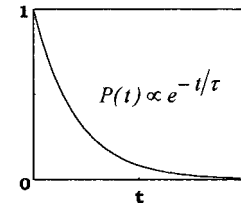
### Semiconducteurs classiques (3D, 2D) :

Continuum d'états électroniques très large (largeur ~ quelques eV)

- Probabilité de survie dans un état initial  $(k, 0 \text{ phonon})$  :  
exponentielle décroissante

$$(k, 0) \longrightarrow (k', 1 \text{ phonon})$$

- Électrons et phonons en régime de couplage faible



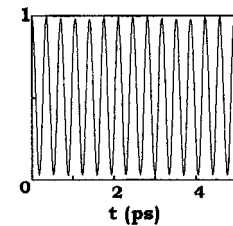
### Boîtes quantiques OD :

Existence de niveaux électroniques discrets + continuum étroit de phonons

- Probabilité de survie électronique dans un état  $|1P_{-} \rangle \otimes |0_{\text{ph}} \rangle$  :  
oscillation de Rabi

$$|1P_{-} \rangle \otimes |0_{\text{ph}} \rangle \rightleftharpoons |1S \rangle \otimes |1_{\text{ph}} \rangle$$

- Électrons et phonons en régime de couplage fort



tent, comment expliquer dans nos expériences que, à la suite d'une excitation optique du système, il y ait relaxation efficace de l'énergie et évolution irréversible de la population excitée vers l'état fondamental du système ? On note que le processus de relaxation radiative est à écarter, puisque le taux d'émission radiative spontanée est plusieurs ordres de grandeur plus faible que celui des atomes dans le vide, du fait de la faible séparation des niveaux d'énergie des boîtes.

Une première ébauche de réponse au problème de la relaxation de l'énergie tire son origine de ce que l'état polaronique inclut forcément une composante correspondant à l'excitation d'un quantum de vibra-

tion. Toute l'analyse qui précède a été faite en supposant que les phonons optiques avant leur couplage fort avec les électrons étaient stables. En réalité, on sait que les phonons optiques sont instables, même dans les matériaux cristallins parfaits, à cause de l'anharmonicité des vibrations. Cette dernière est bien documentée dans les semiconducteurs III-V et il est établi qu'un phonon optique ne vit que  $\approx 2$  ps à température ambiante et  $\approx 10$  ps vers 10 K. Dans le GaAs massif, il a été montré que l'anharmonicité cassait un phonon optique de grande longueur d'onde ( $q \approx 0$ ) en un autre phonon optique et un phonon acoustique (tous deux en bord de zone). De même, on a montré récemment

que dans les boîtes quantiques, l'instabilité des phonons optiques, associée au couplage phonon-phonon, conduit à la relaxation d'un polaron excité vers l'état de polaron fondamental.

Finalement, la physique des boîtes quantiques semiconductrices diffère de celle des atomes artificiels, parce que leurs niveaux d'énergie ne sont pas de purs niveaux électroniques mais des niveaux polarons. L'interaction électron-phonon dans ces boîtes peut être mise en parallèle avec l'interaction électron-photon dans une cavité électromagnétique accordée. Dans les deux cas, nous avons affaire à un régime de couplage fort entre un électron et des bosons.

POUR EN SAVOIR PLUS

Sur la mise en évidence du régime de couplage fort dans les boîtes quantiques

**Hameau (S.) et al.**, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152, 1999.

Pour une discussion générale des différents régimes de couplage entre un état discret et un continuum :

**Cohen-Tannoudji (C.), Dupont-Roc (J.) et Grynberg (G.)**, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, (InterEditions/Éditions du CNRS), 1988.

Sur les effets de l'anharmonicité sur le temps de vie des phonons massifs ou des polarons dans les boîtes quantiques :

**Vallée (F.) et Bogani (F.)**, *Phys.Rev.* **B43**, 12049, 1991.

**Verzelen (O.) et al.**, *Phys. Rev.* **B62**, R4809, 2000.

Pour une introduction à l'électrodynamique des atomes en cavité métallique et pour les polaritons dans les microcavités semiconductrices :

**Raimond (J. M.) et al.**, *Images de la Physique*, 13-16, 1984.

**Abram (I.) et al.**, *Images de la Physique*, 74-80, 1997.

Article proposé par

G. Bastard, tél 01.44.32.33.73, gerald.bastard @ lpmc.ens.fr

R. Ferreira, tél 01.44.32.25.47, robson.ferreira @ lpmc.ens.fr

Y. Guldner, tél 01.44.32.38.39, yves.guldner @ lpmc.ens.fr

S. Hameau, tél 01.44.32.35.05, sophie.hameau @ lpmc.ens.fr

O. Verzelen, tél 01.44.32.33.73, olivier.verzelen @ lpmc.ens.fr

Ont participé à ce travail : E. Deleporte, Laboratoire de physique de la matière condensée, CNRS/P6/P7/ENS, 24 rue Lhomond, 75231 Paris cedex 05, J. Zeman, Laboratoire des champs magnétiques intenses, CNRS/MPI, 25 av. des Martyrs, 38042 Grenoble cedex 9 et J.-M. Gérard, France Telecom/CNET/DTD/CDP, BP 107, 92225 Bagneux cedex.