

# Mécanismes de décohérence dans les boîtes quantiques de semiconducteur

G. Bastard ENS (Paris)

## RÉSUMÉ

Les *boîtes quantiques* de semiconducteur

Le modèle du *macro - atome* et ses conséquences

Vérifications *expérimentales*.



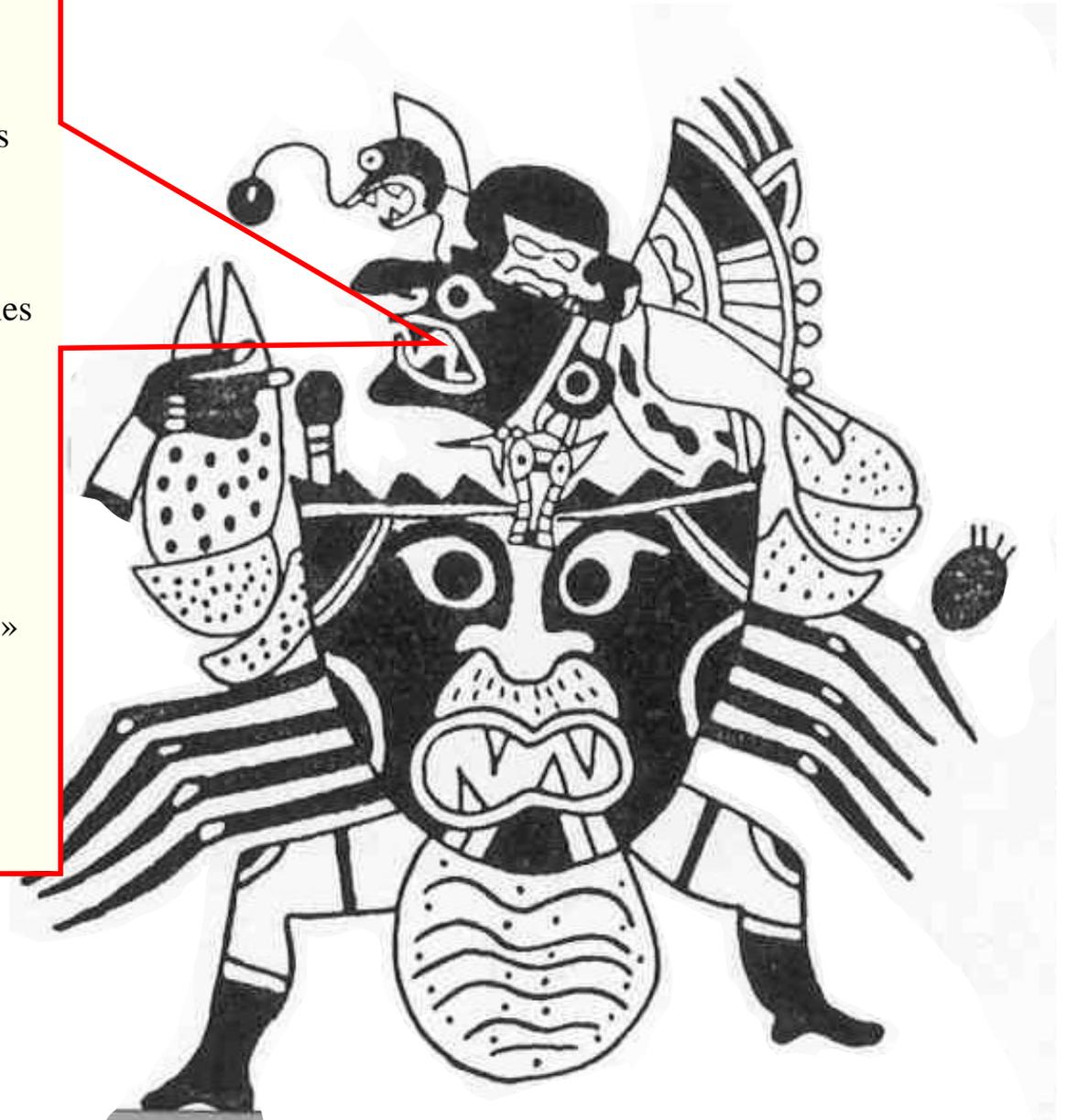
Nouvel aspect du couplage électron-phonon dans les boîtes quantiques: *les polarons*

*L'instabilité* des *polarons* comme source de *décohérence*

Autre source de décohérence: la *nature* de l'excitation *interbande*; les *transitions* « *croisées* »

La décohérence d'origine *extrinsèque*:  
les fluctuations électrostatiques

Conclusion



Cécile Kammerer  
Guillaume Cassabois

Claude Delalande  
Philippe Roussignol

LPMC-ENS

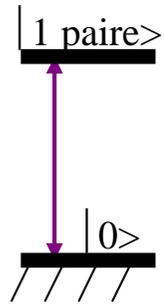
Angela Vasanelli  
Aleksandar Jankovic  
Olivier Verzelen

Robson Ferreira

Sophie Hameau  
Louis Anne de Vaulchier  
Jean - Noël Isaia

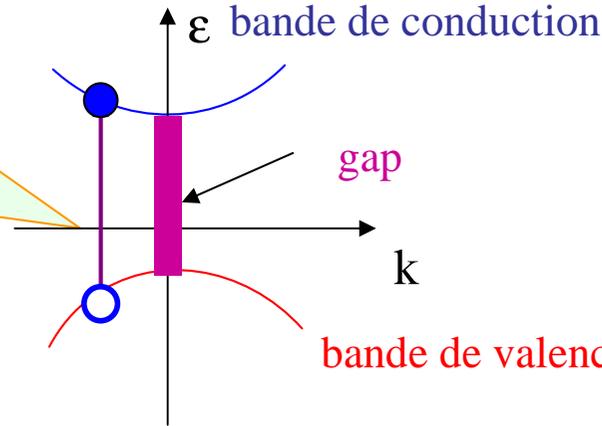
Y. Guldner

# Semiconducteurs



Un semiconducteur sous *excitation optique* n'est il qu'une collection de *systemes* à *deux niveaux*?

**NON**



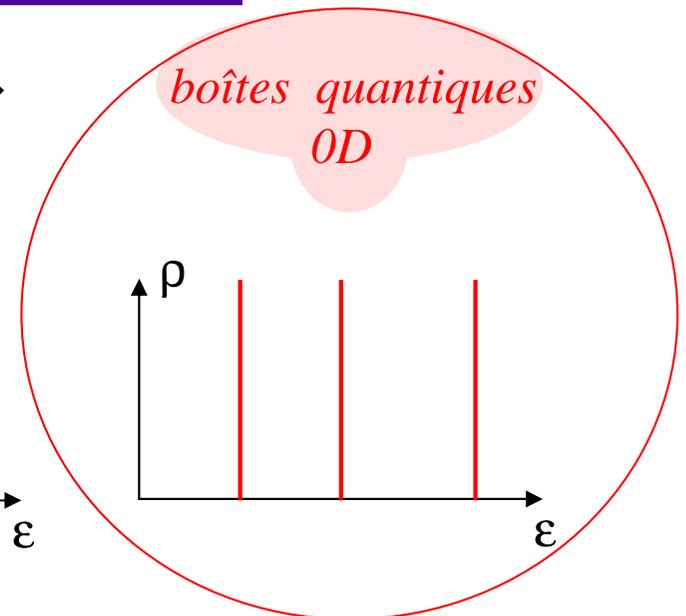
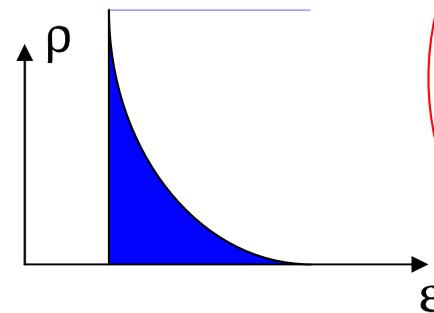
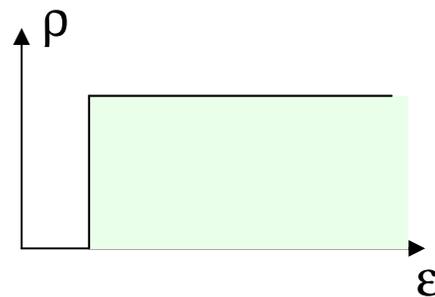
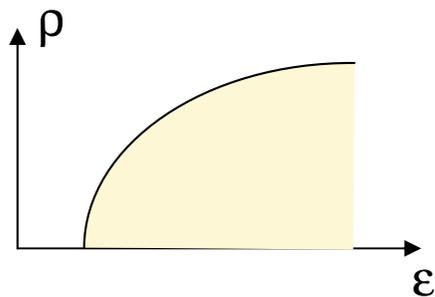
*continuum* d'états

décohérence

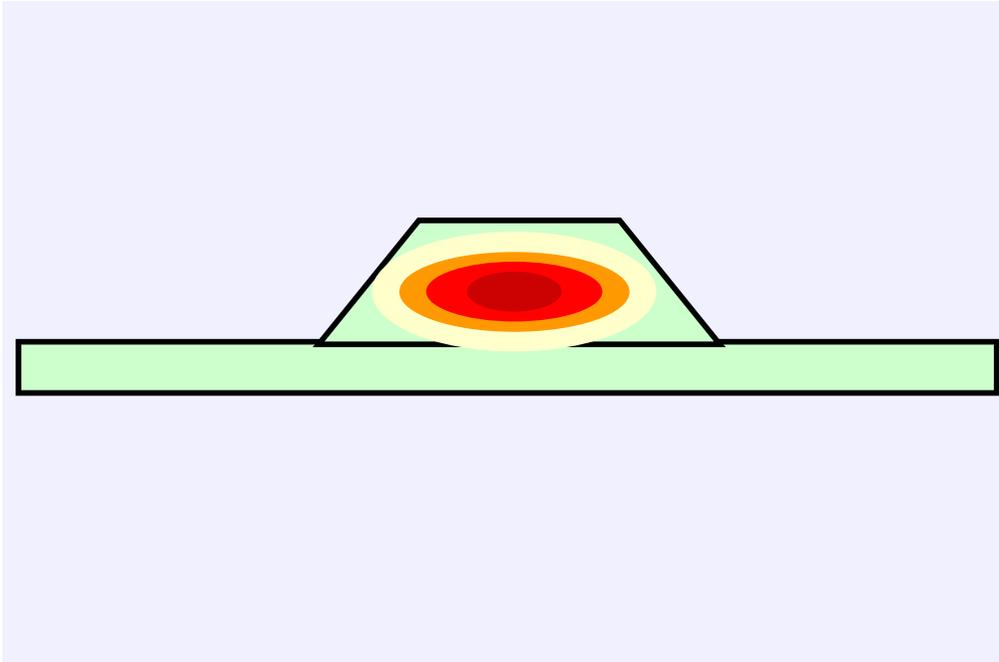
L'invariance par translation conduit aux *bandes*. Pour avoir des états *discrets*, il faut des matériaux massifs *imparfaits*  $\Rightarrow$  *DOPAGE, LACUNES* et autres *DEFAUTS*.

ou *REDUIRE LA DIMENSION DES CONTINUUMS*

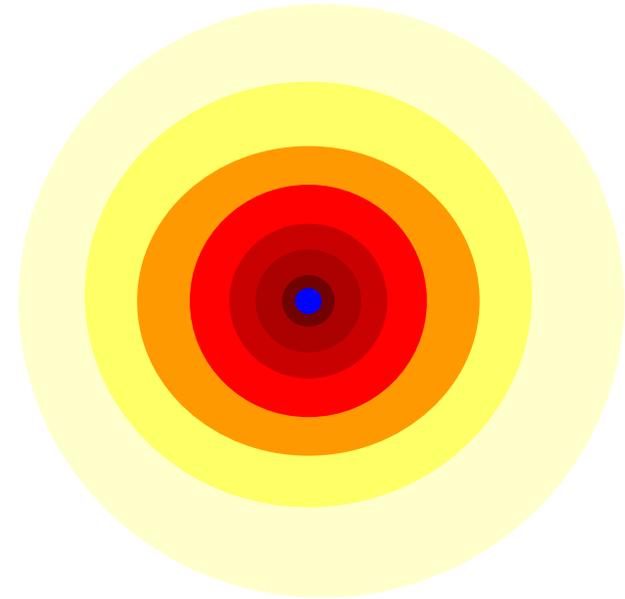
Matériaux **massifs**  $\Rightarrow$  **puits quantiques**  $\Rightarrow$   **fils quantiques**  $\Rightarrow$   
 Continuum **3D** **2D** **1D**



# Les macro - atomes

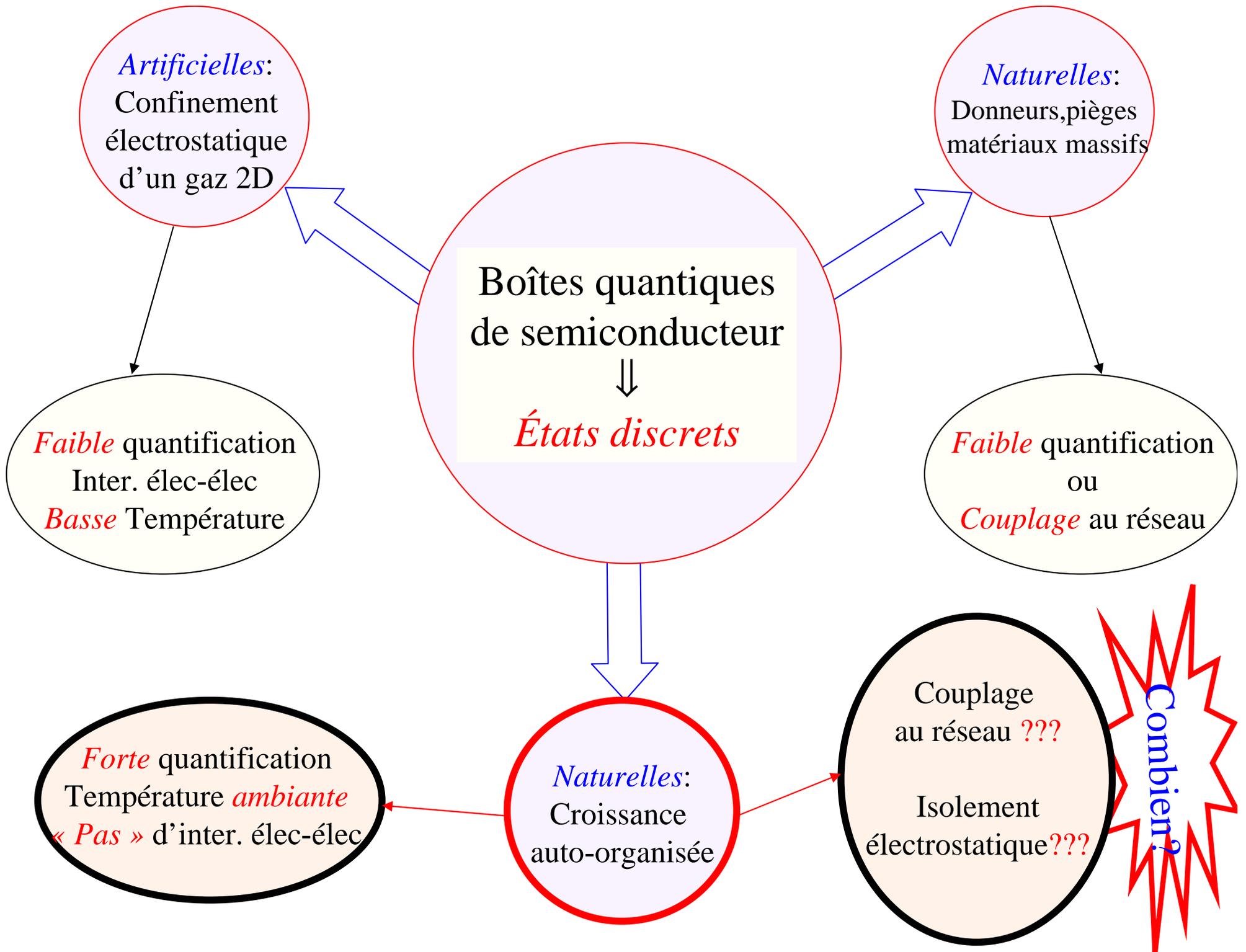


Boîte quantique de semiconducteur



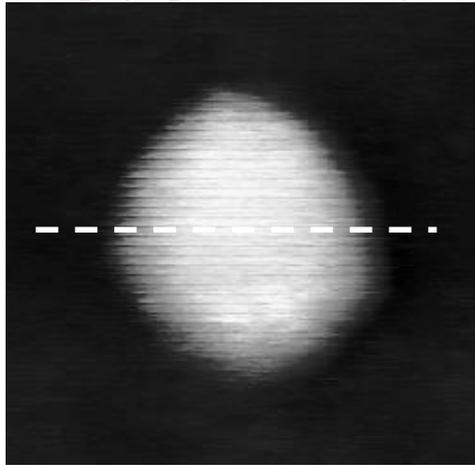
Atome monovalent

Dans une *boîte quantique* de *semiconducteur* les électrons et les trous sont confinés à trois dimensions, *juste comme* les électrons le sont dans les *atomes monovalents*. On en a conclu que l'on pouvait *manipuler* les états propres des boîtes *comme* les physiciens atomistes *manipulent* les états atomiques.  
⇒ *intrication, q-bit, calcul quantique .....*

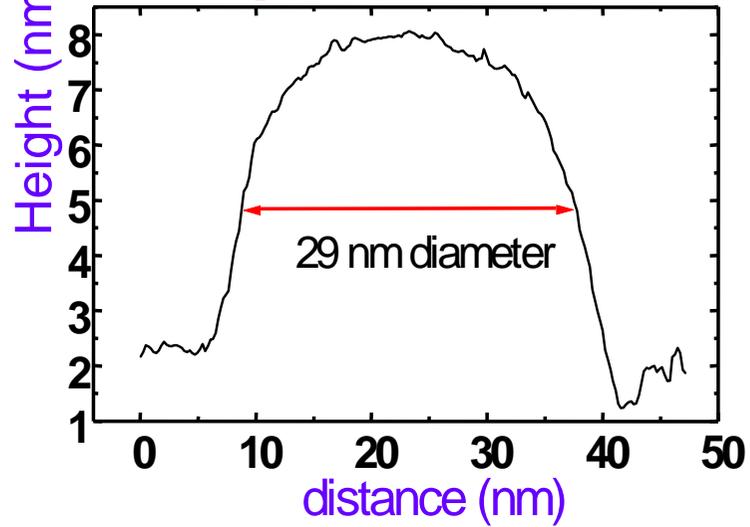


# Images de boîtes quantiques uniques

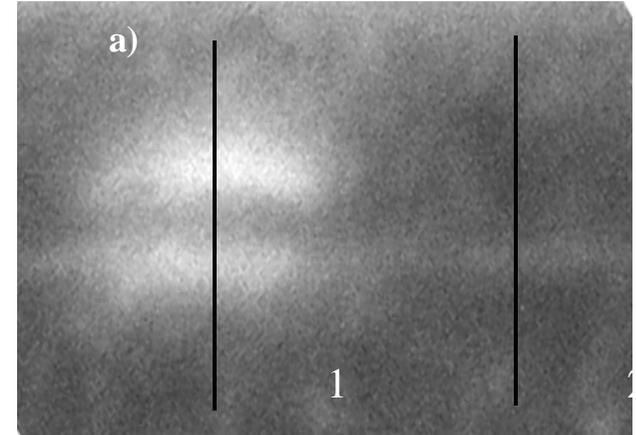
topographic STM image



line-scan profile across the QD centre

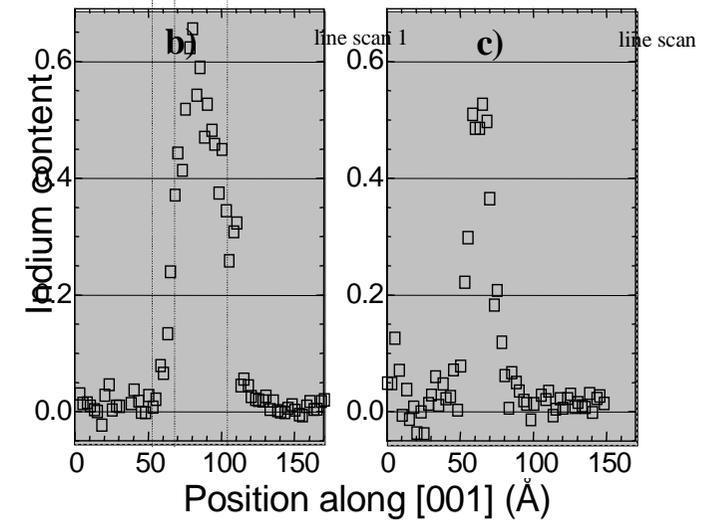
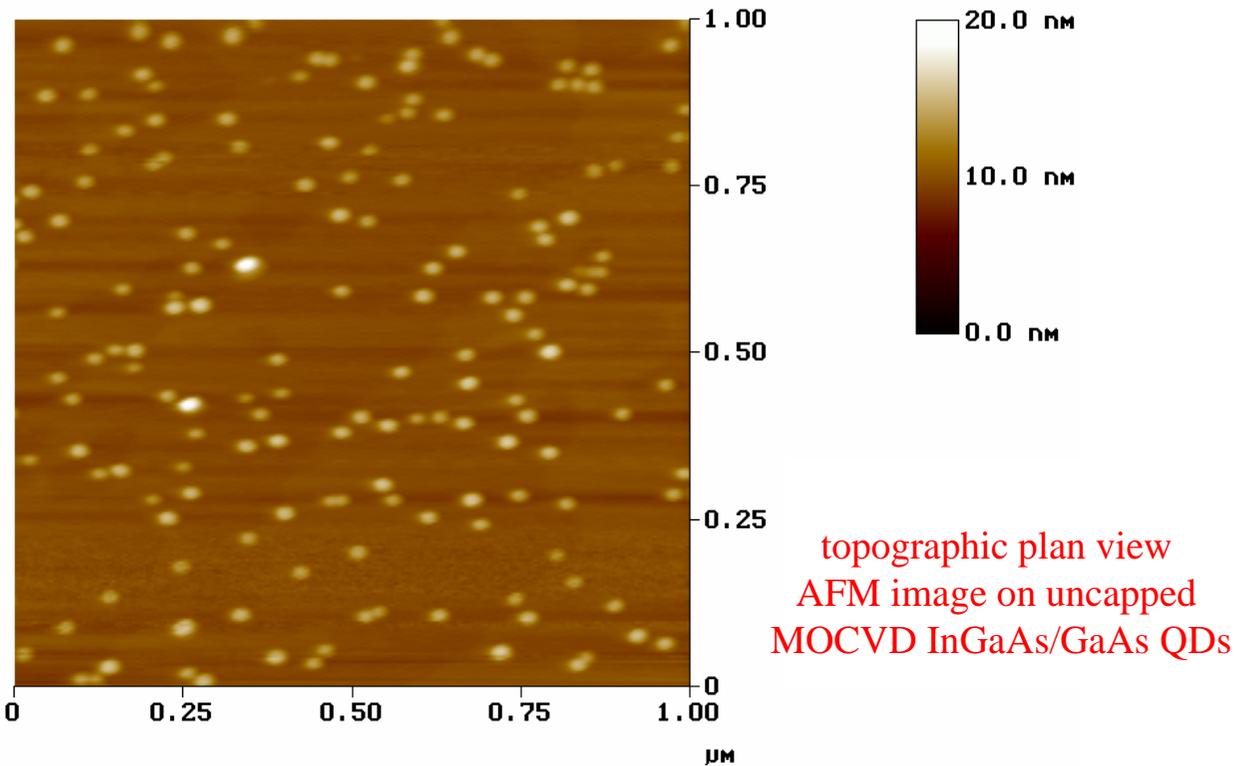


Scanning TEM image in the [1-10] direction



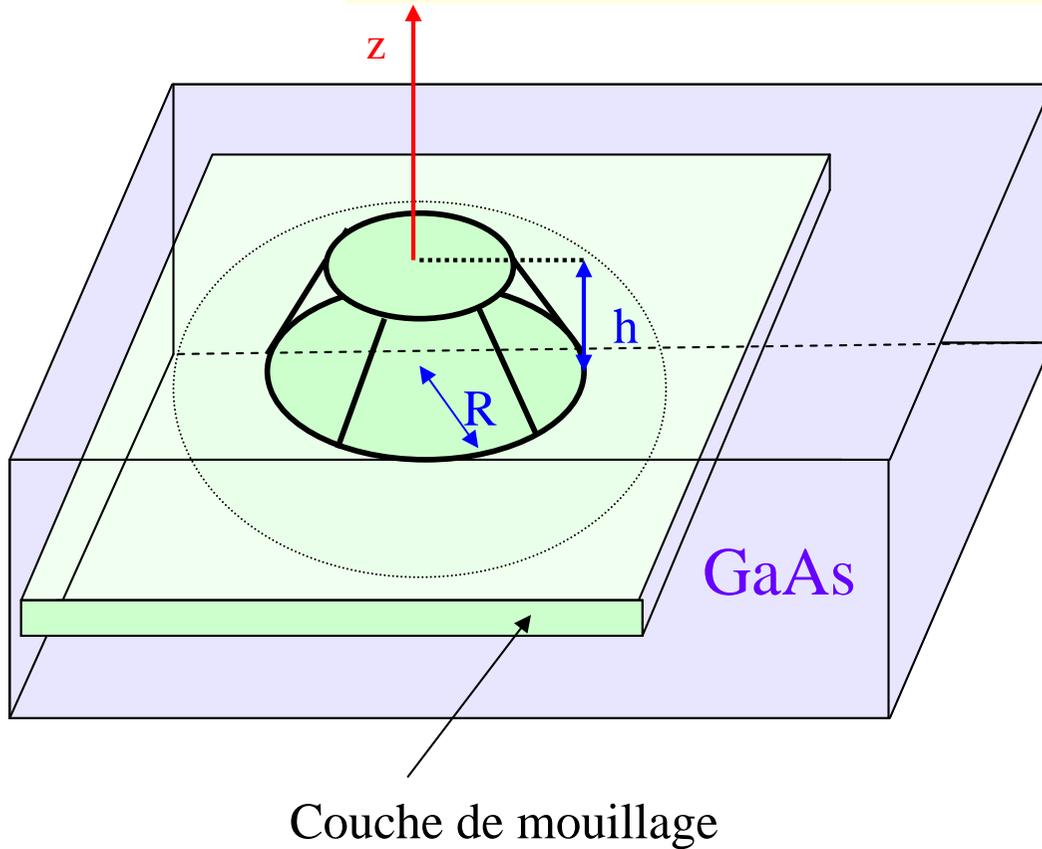
WL+dot

WL only



compositional profile across the dot

# Boîtes quantiques InAs/GaAs



$N_d$  : quelques  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$

non dopées intentionnellement  
le *dopage sélectif* est possible

$R$  :  $\approx 10 \text{ nm}$        $h$  :  $\approx 3 \text{ nm}$

Approche « masse effective »

$$[L_z, H_{\text{eff}}] = 0$$

Niveaux  $S, P_{\pm}, D_{\pm}, \dots$

*Séparation* des niveaux électroniques  $\approx 50 \text{ meV}$

L'effet *dominant* dans les boîtes quantiques de semiconducteurs  
est la *quantification spatiale* par effet de taille

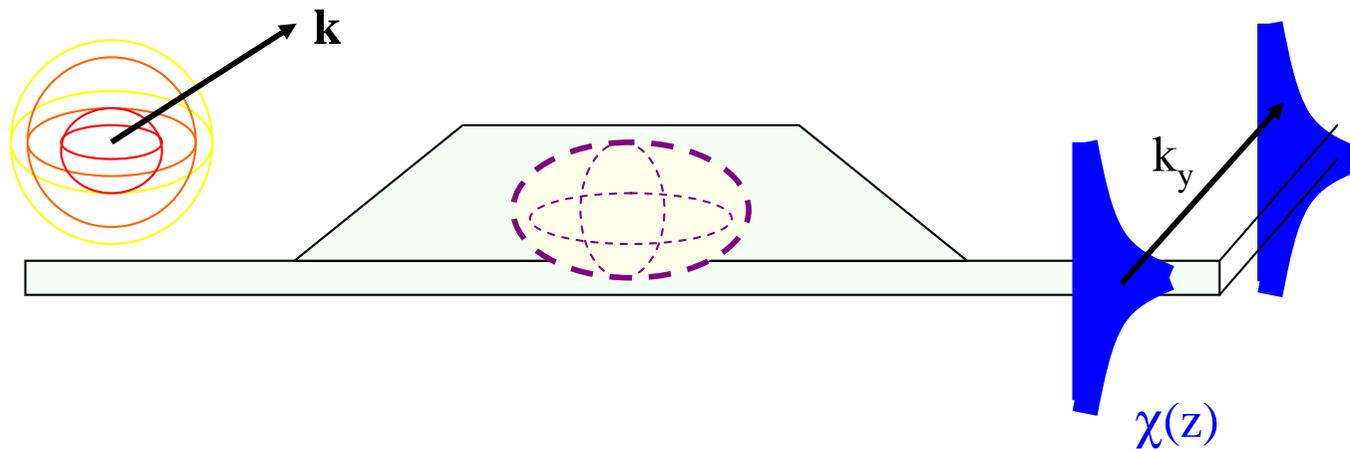
$$\lambda_{dB} \approx L \qquad \Delta x \Delta p \geq h/2$$

MAIS

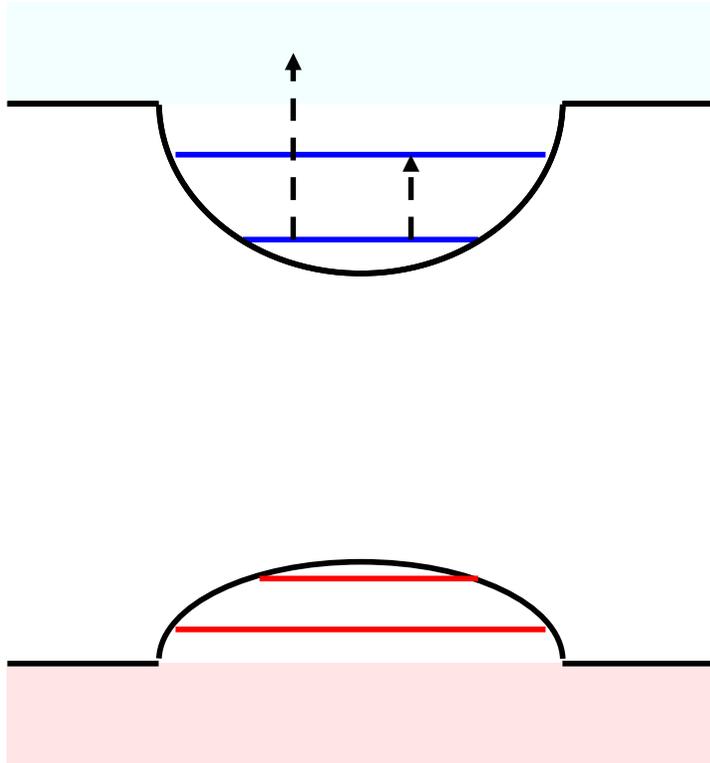
Il existe aussi des *continuums d'états* électroniques associés

à la *couche de mouillage (2D)*

à la *barrière (3D)*



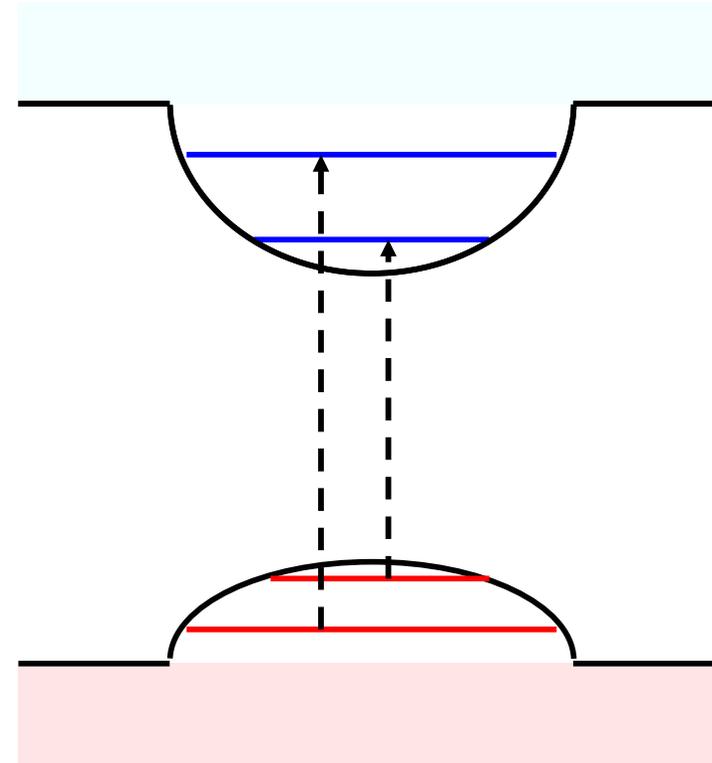
# Excitations dans une boîte quantique



Excitations *intrabandes*

Moyen ou lointain IR

Nécessite de porteurs  $\Rightarrow$  **DOPAGE**

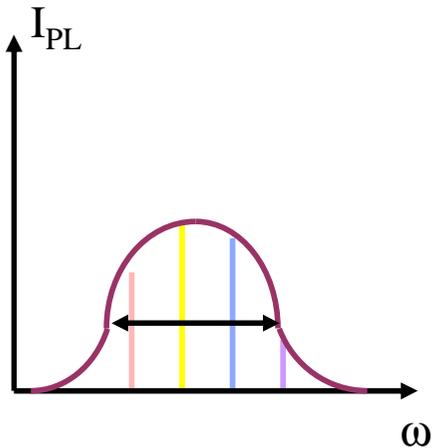
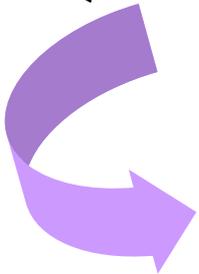
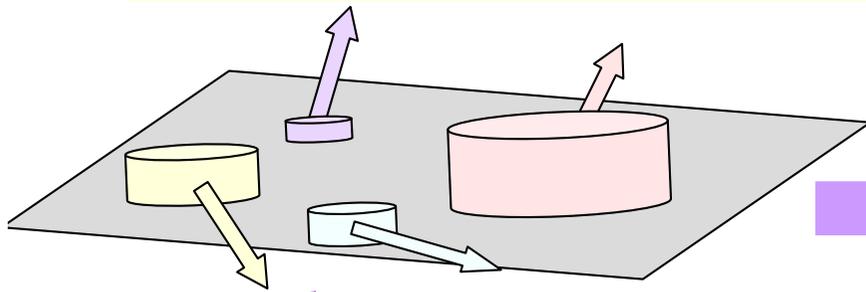


Excitations *interbandes*

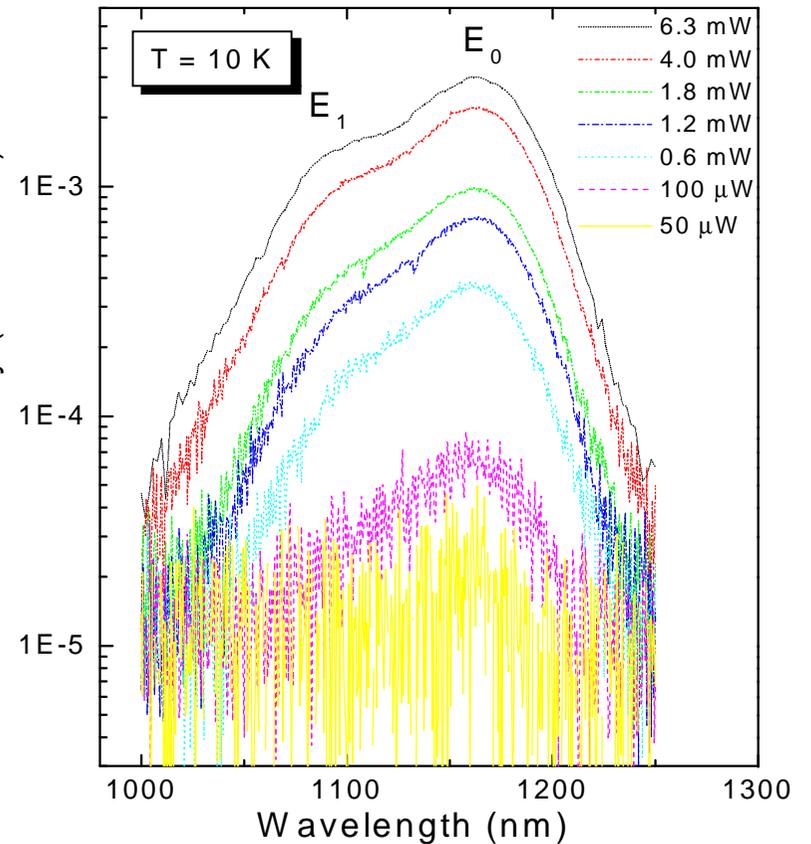
Proche IR - Visible - UV

Boîtes **NON** dopées

# Conséquence de la distribution de taille



PL Intensity (arb. units)



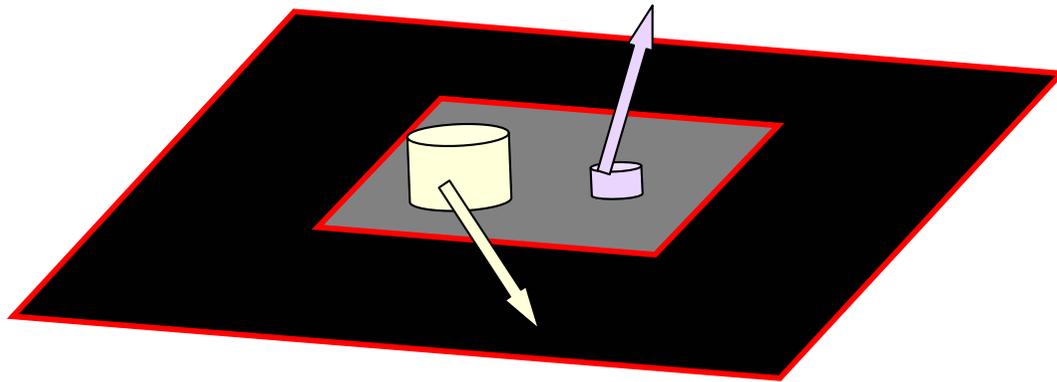
*Toute mesure* effectuée sur des *ensembles de boîtes* présentera un *élargissement inhomogène*

La conséquence de la *distribution de taille* est que des boîtes différentes *émettent à des énergies différentes*

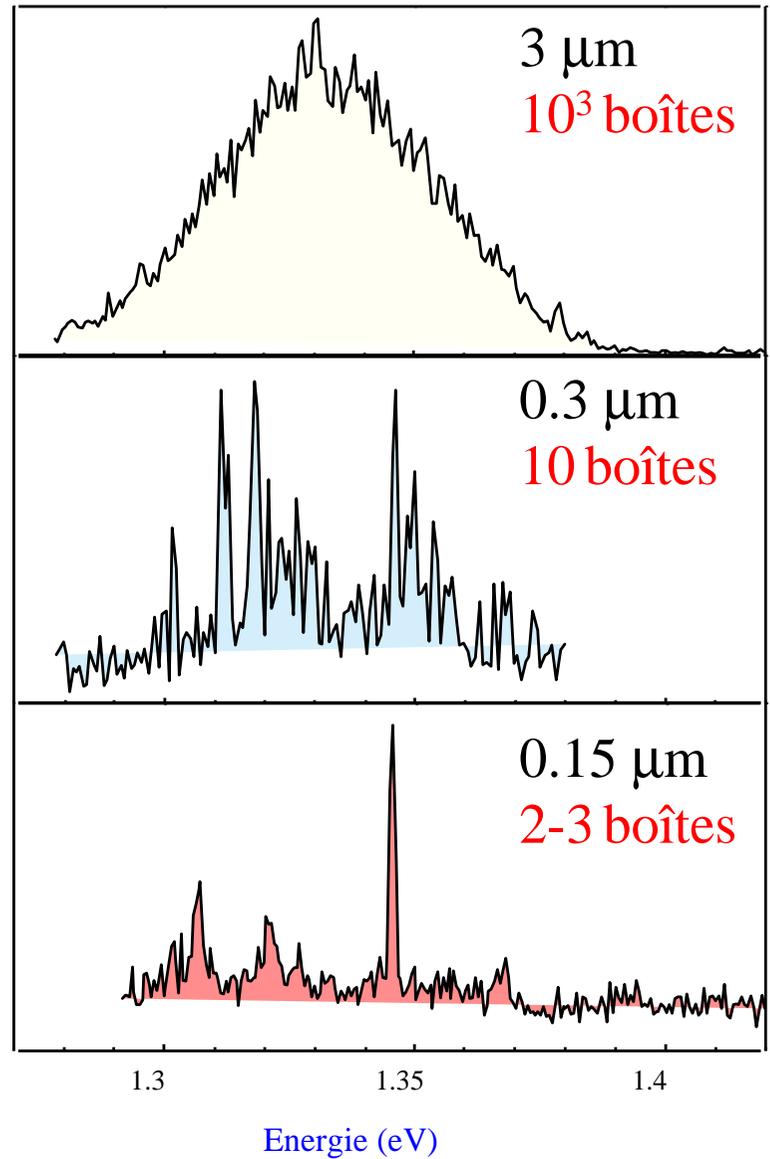
Donc, la raie d'émission est élargie de manière *inhomogène*.

FWHM  $\approx 70\text{ meV}$

# Les expériences d'optique sur des boîtes uniques



Photoluminescence (u.a.)



Pour se débarrasser de l'élargissement inhomogène, on doit utiliser des masques etc..pour sélectionner *quelques* boîtes ou, à la limite, *une seule boîte*.

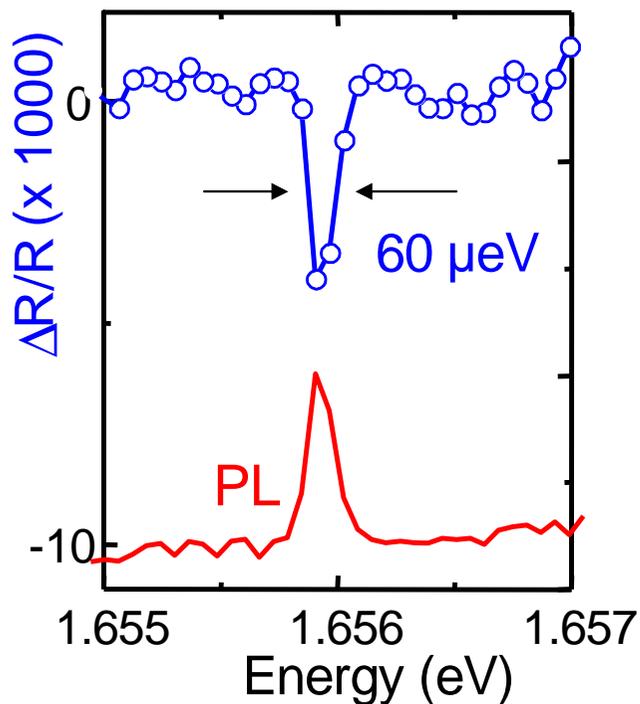
Ces expériences exhibent les caractéristiques « *atomiques* »  
des boîtes

$$\text{HWHM} \approx \text{qq } \mu\text{eV}$$

C. Kammerer et al 2001

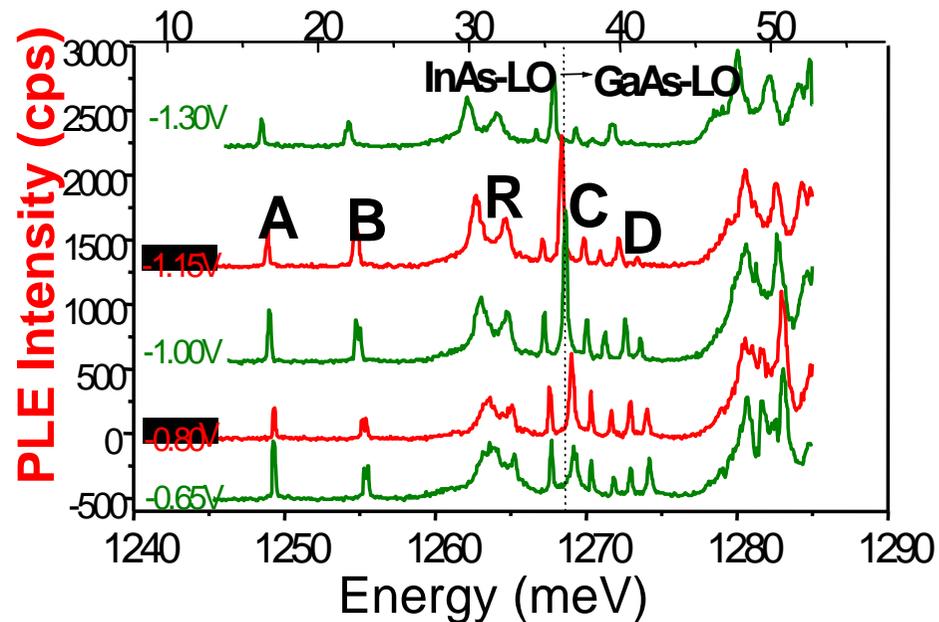
# Evidences de niveaux discrets par spectroscopie

**Single Quantum Dot:  
Optical Nonlinearity  
vs. PL**

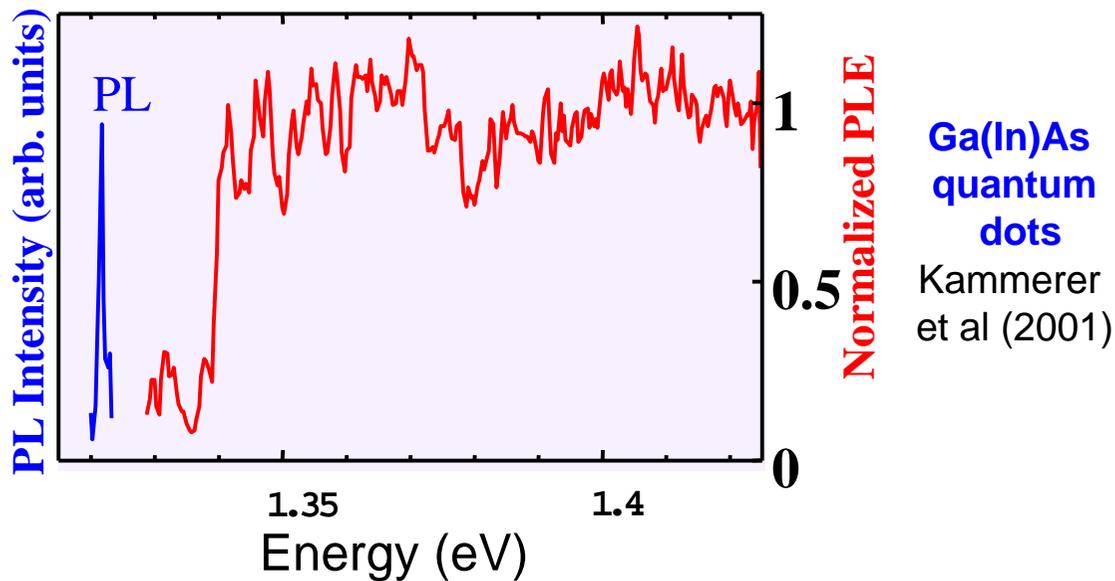


**Interface quantum dots:  
Large dipole moments: 50-100 Debye  
Strong coupling to light  
Lienau et al (2002)**

**PLE detecting on X**



**Ga(In)As quantum dots  
Skolnick et al (2002)**



**Ga(In)As  
quantum  
dots  
Kammerer  
et al (2001)**

# Les limites du modèle du Macro - atome

## I: le couplage aux autres degrés de liberté

intrinsèques

Dans un atome pour des énergies comparables à la transition de résonance ( $\approx$  eV) il n'existe *que des degrés de libertés électroniques*: les noyaux sont gelés.



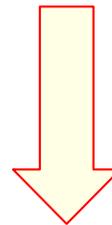
La *desexcitation* atomique est *principalement radiative*

Dans les boîtes quantiques il existe d'autres excitations élémentaires, les vibrations, les magnons,..... Les excitations électroniques y sont couplées.



La *desexcitation* des boîtes n'est pas *nécessairement radiative*.

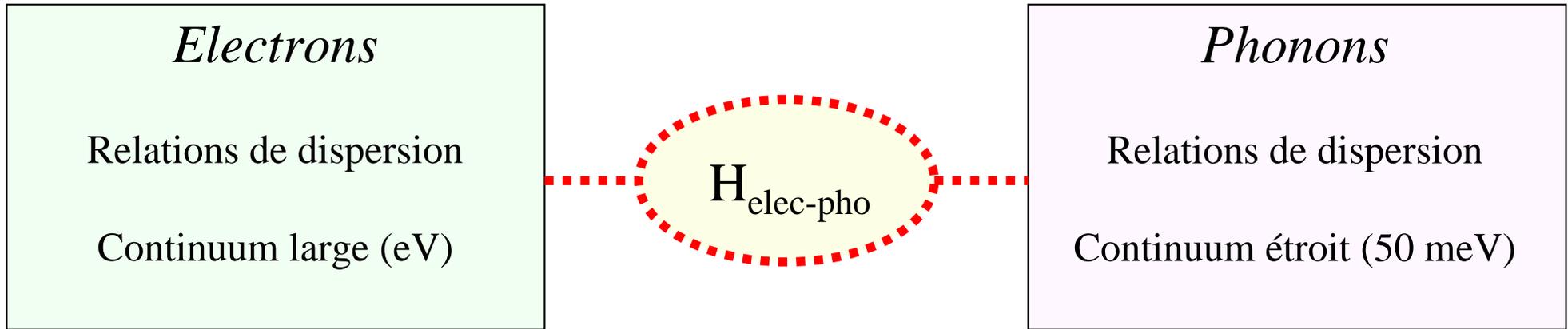
Systèmes *simples*  
*Long* temps de cohérence  
⇒ manipulations « *aisées* »



Système complexes  
Cohérences *brèves??*  
Manipulations *aisées??*

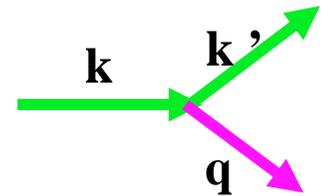
*Avant* de transposer mécaniquement ce que l'on sait faire avec des atomes, il est *nécessaire* de s'assurer que les couplages entre les électrons et les autres excitations sont *en effet négligeables*.

En réalité nous montrerons que ce n'est possible *qu'aux températures cryogéniques*.

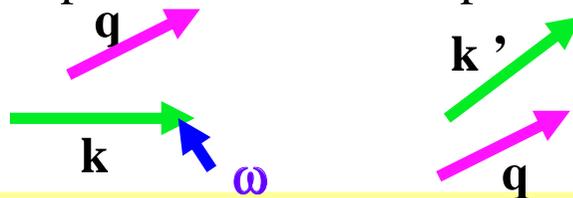


Dans les semiconducteurs (massifs, puits quantiques) on *oublie presque* l'interaction electron-phonon et l'on raisonne en termes d'états *factorisés*  $|\Psi_{\text{elec}}\rangle \otimes |\Psi_{\text{phon}}\rangle$ .  
 L'interaction électron - phonon (Fröhlich,,...) *diffuse* les états factorisés.

On dit « l'électron *émet (absorbe)* (irréversiblement) des phonons».

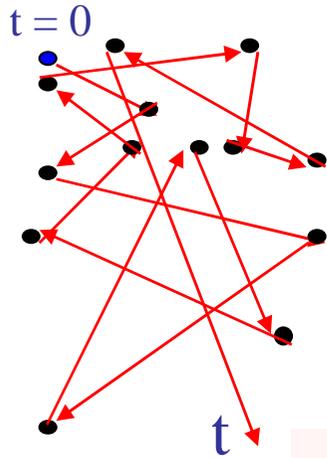


Ou, pour les *propriétés optiques*, « l'électron absorbe (émet) un photon », sous - entendant que la partie phonon de  $\Psi$  n'est pas concernée par le processus optique



Ce *même raisonnement* de COUPLAGE FAIBLE a été appliqué aux boîtes quantiques de semiconducteur  $\Rightarrow$  *phonon bottleneck*

## Couplage faible: dilution irréversible et règle d'or de Fermi



Dans les matériaux massifs, puits et fils quantiques  
 Les états factorisés électrons  $\otimes$  phonon forment un *continuum composite large*.  
 Continuum électronique  $\Rightarrow$  *large* ( $\approx 1$  eV)  
 Continuum phonon acoustique  $\Rightarrow$  *étroit* ( $\approx 20$  meV)  
 Continuum phonon optique  $\Rightarrow$  *très étroit* ( $\approx 3-4$  meV)

La probabilité que le système électron - phonon retourne à l'état initial (*probabilité de survie*) décroît *exponentiellement* avec le temps:

$$P_{n\mathbf{k}, \nu\mathbf{q}}(t) = \left| \langle n\mathbf{k} | \otimes \langle \nu\mathbf{q} | \exp(-i(H_e + H_{ph} + H_{e-ph})t/\hbar) | \nu\mathbf{q} \rangle \otimes | n\mathbf{k} \rangle \right|^2$$

$$P_{n\mathbf{k}, \nu\mathbf{q}}(t) \approx \exp(-t/\tau_{n\mathbf{k}, \nu\mathbf{q}}) \text{ quand } t \rightarrow \infty$$

On a une *dilution irréversible* de l'état initial dans le *continuum* des états finaux. *D'une manière équivalente*, chaque état factorisé  $|n\mathbf{k}\rangle \otimes |\nu\mathbf{q}\rangle$  acquiert un *temps de vie* fini donné par la *règle d'or de Fermi* :

$$\hbar / \tau_{n\mathbf{k}, \nu\mathbf{q}} = 2\pi \sum_{n'\mathbf{k}', \nu'\mathbf{q}'} \left| \langle n\mathbf{k} | \otimes \langle \nu\mathbf{q} | H_{e-ph} | \nu'\mathbf{q}' \rangle \otimes | n'\mathbf{k}' \rangle \right|^2 \delta(\varepsilon_{n\mathbf{k}, \nu\mathbf{q}} - \varepsilon_{n'\mathbf{k}', \nu'\mathbf{q}'})$$

# Taux de perte d'énergie: le triomphe du couplage faible entre electrons et phonons

Figure adaptée de: J. Shah

*Hot carriers in semiconductor nanostructures  
Physics and Applications. Academic Press, 1992, p.290*

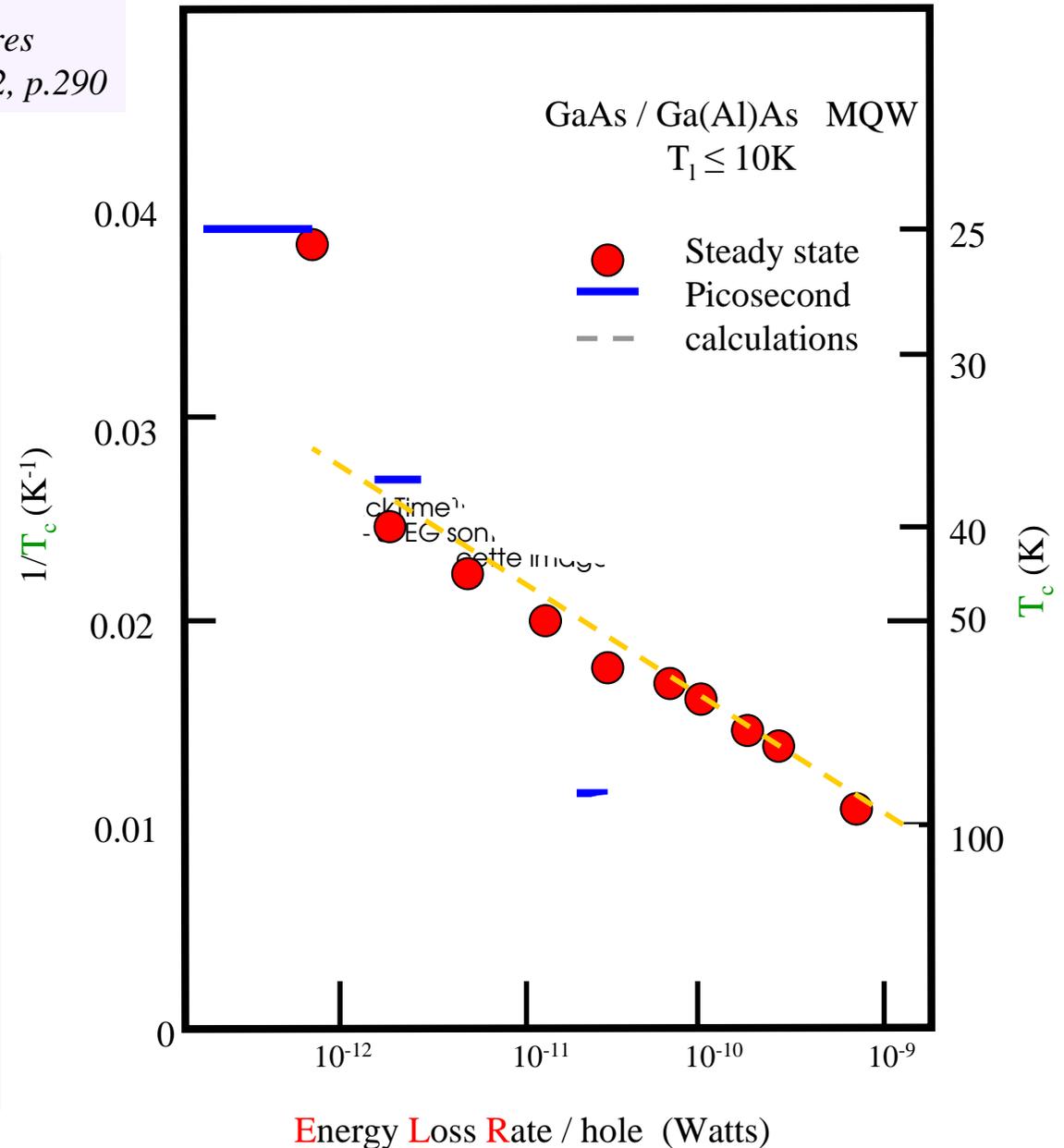
En calculant les *taux de transition*  
au moyen de la *règle d'or* de *Fermi*,  
il est possible de calculer les  
*taux de perte d'énergie* des porteurs  
excités.

La comparaison avec les expériences  
est *excellente*.

Pour des *phonons sans dispersion* ( $h\omega_{LO}$ )  
et des porteurs *maxwelliens*, on trouve:

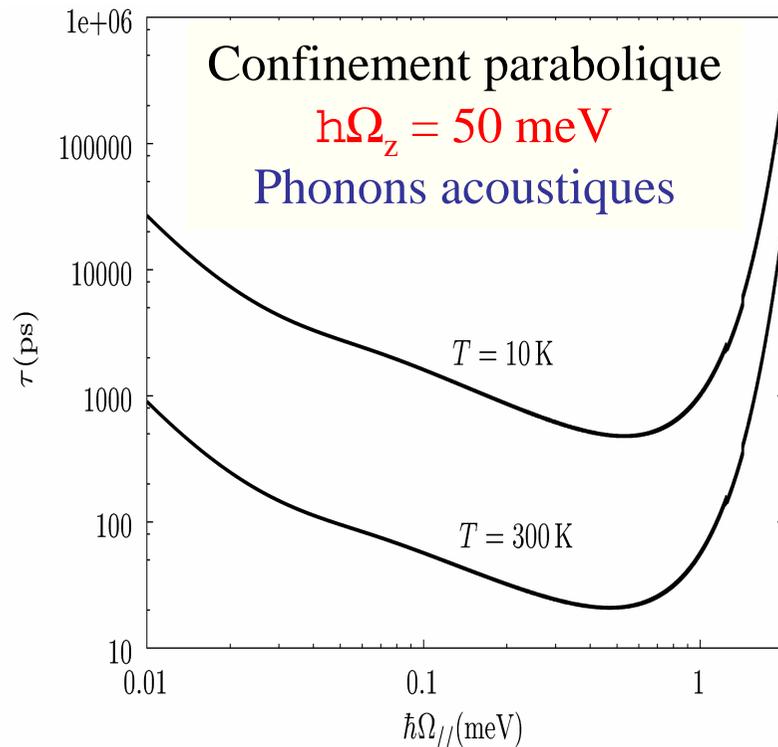
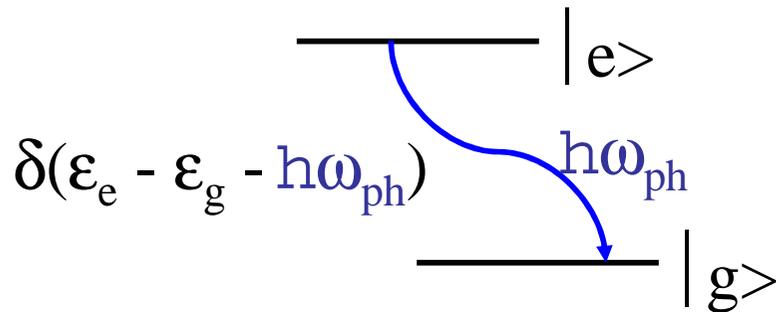
$$ELR \approx (1/\tau) h\omega_{LO} \exp(-h\omega_{LO}/kT_c)$$

$T_c$  est la température des porteurs *chauds*



# Phonon bottleneck

Bockelmann et al, Phys. Rev.**B42**, 8947 (1990); H. Benisty, Phys. Rev.**B51**, 13281 (1995)

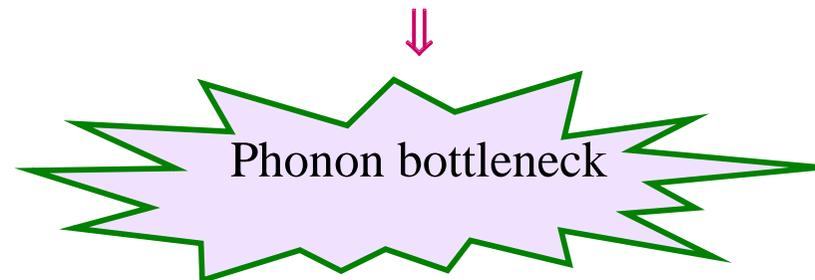


Dans les boîtes quantiques les niveaux d'énergie sont **discrets**

Les phonons *optiques* n'ont pas de *dispersion*.  
 $\Rightarrow$  leur émission est **impossible**  
 (sauf miracle:  $\epsilon_e - \epsilon_g = \hbar\omega_{LO}$ )

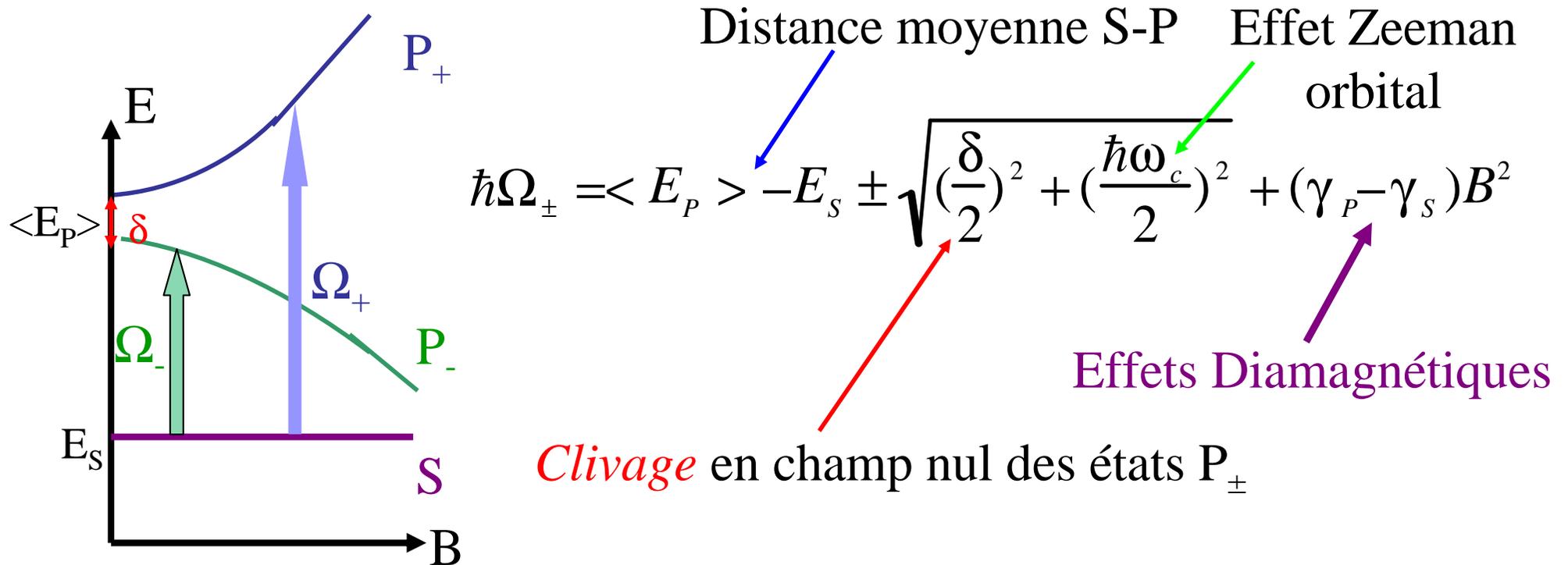
Les branches *acoustiques* sont plus *larges*.  
*Mais* les éléments de matrice de l'interaction electron - phonon sont *très petits* si:

$$\hbar\omega_{ph} > 1-2\text{ meV}$$



# Absorption des boîtes quantiques dans l'IR lointain magnéto - spectroscopie d'un atome plat *anisotrope* ( $\mathbf{B} // z$ )

S. Hameau et al, PRL83, 4152 (1999)

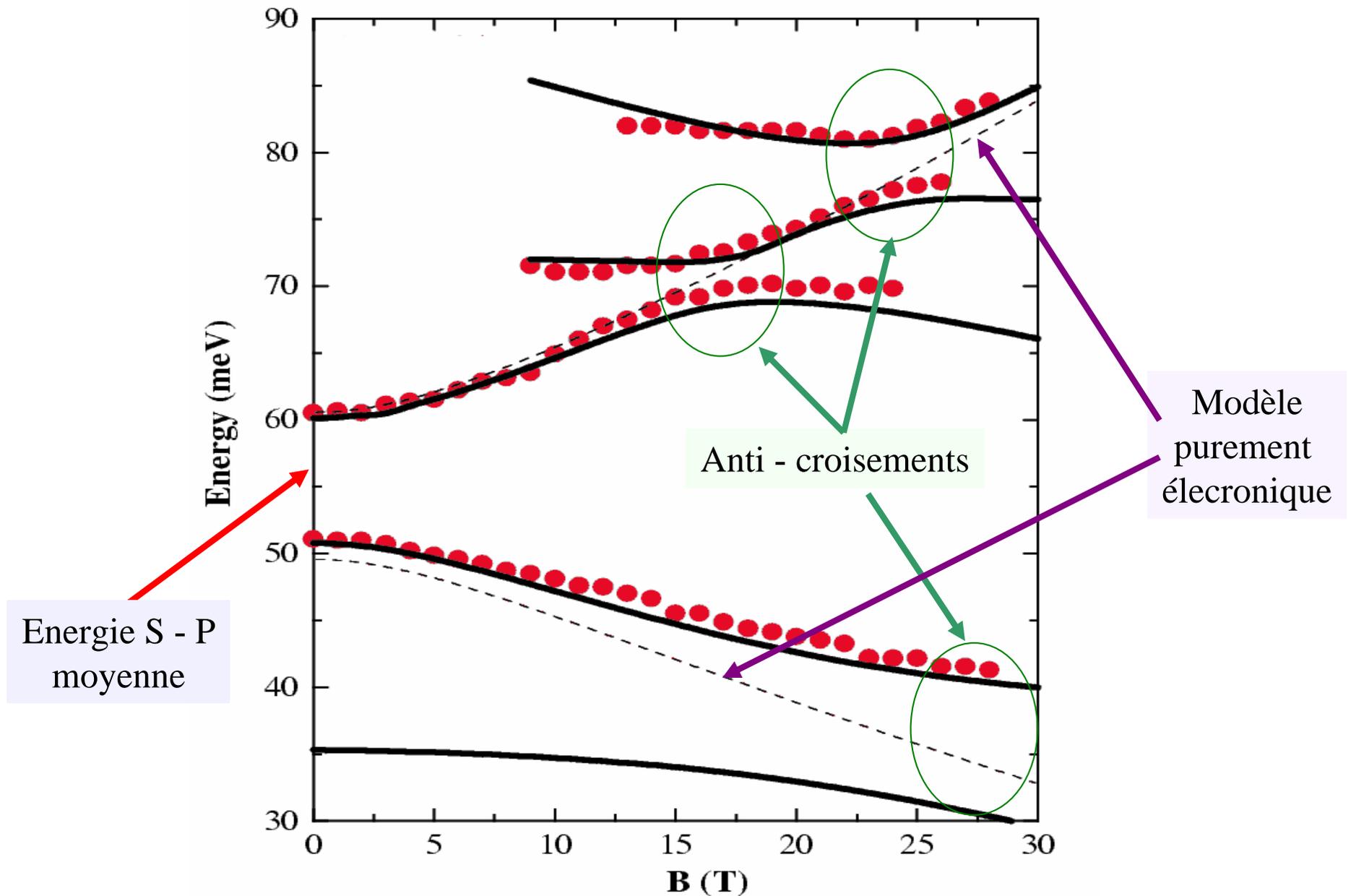


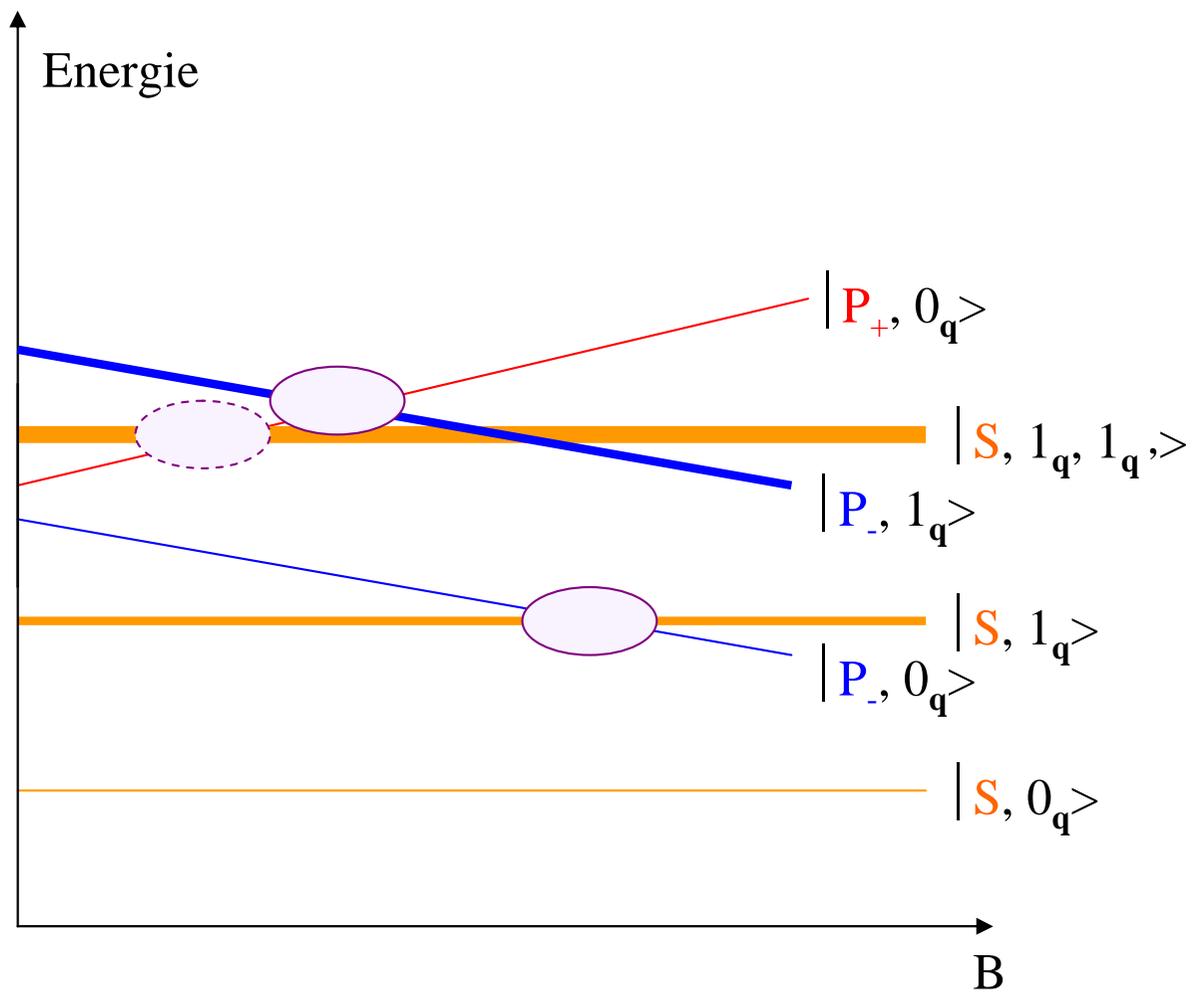
Les expériences de magnéto-absorption dans l'IR lointain sondent:

- \* $E_{\langle P \rangle} - E_S$ , la **masse effective** dans le plan ( $\omega_c = e\mathbf{B}/m^*$ ).
- \*L'*anisotropie* des boîtes *pourvu que* toutes aient la *même* anisotropie.
- \*L'anisotropie peut être due à la *forme* (ex. ellipse)  
ou aux champs *piézo-électriques*.

# Transitions magnéto-optiques dans l'IR lointain des boîtes InAs

S. Hameau et al, PRL **83**, 4152 (1999)



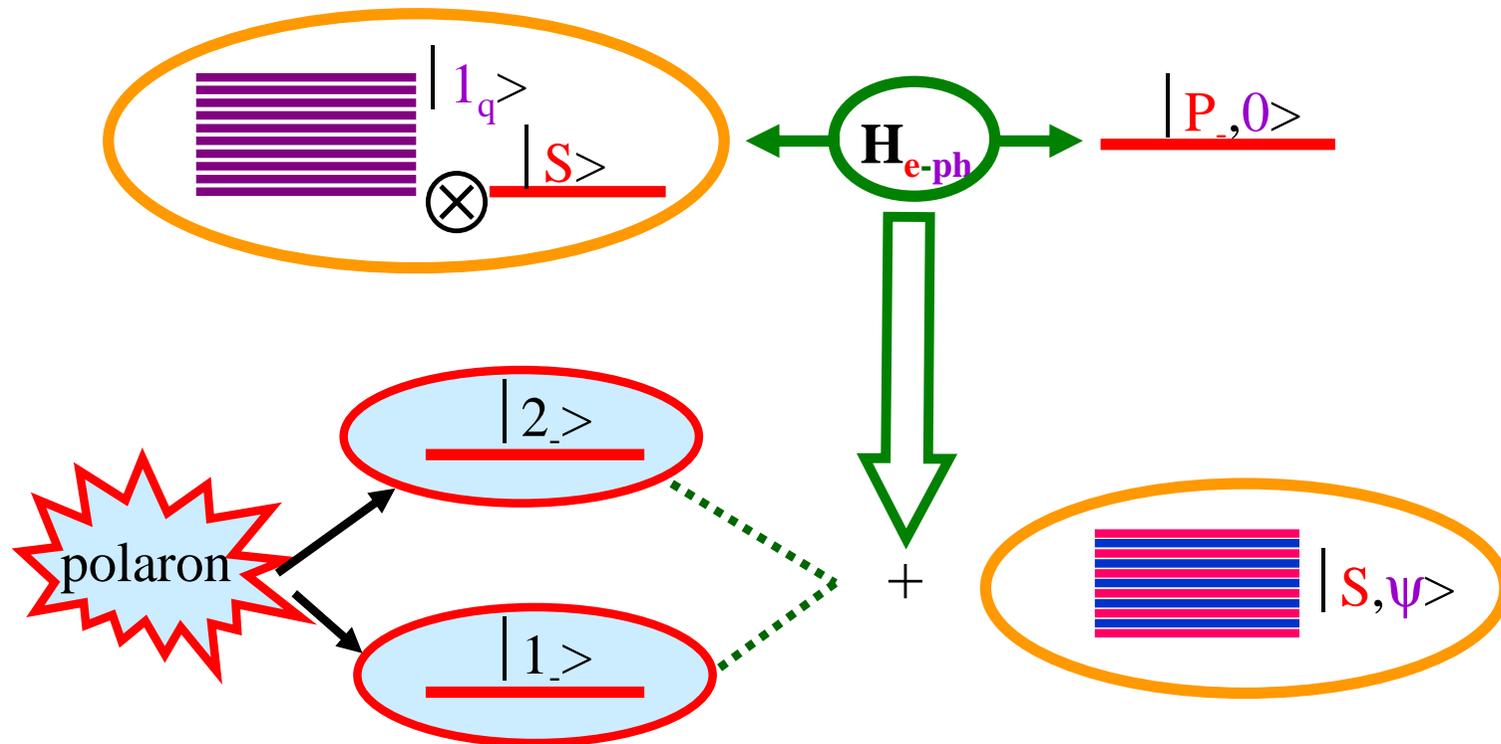


Qu'est ce qu'un *polaron électronique* dans une boîte quantique?

Le modèle le plus simple  
(branche  $\Omega_-$  des spectres M.O.)

On part avec des électrons et des phonons *découplés* :  $H_0 = H_e + H_{ph}$

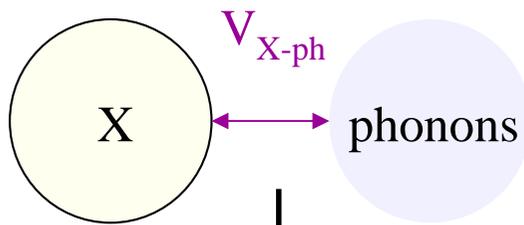
On ne retient qu'*un* niveau électronique  $|P_-, 0\rangle$  et *un* continuum  $|S, 1_q\rangle$



$H_{e-ph}$  est diagonalisé dans cette base limitée. Ceci conduit à *2 états de polaron discrets* et à  $N - 1$  états non couplés

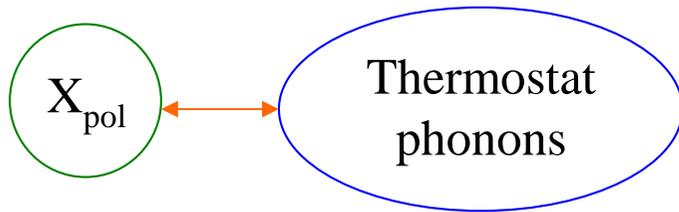
Un polaron est une *superposition cohérente* de *différents* états *électroniques* et de *différentes* occupations de phonons.

# Relaxation des polarons



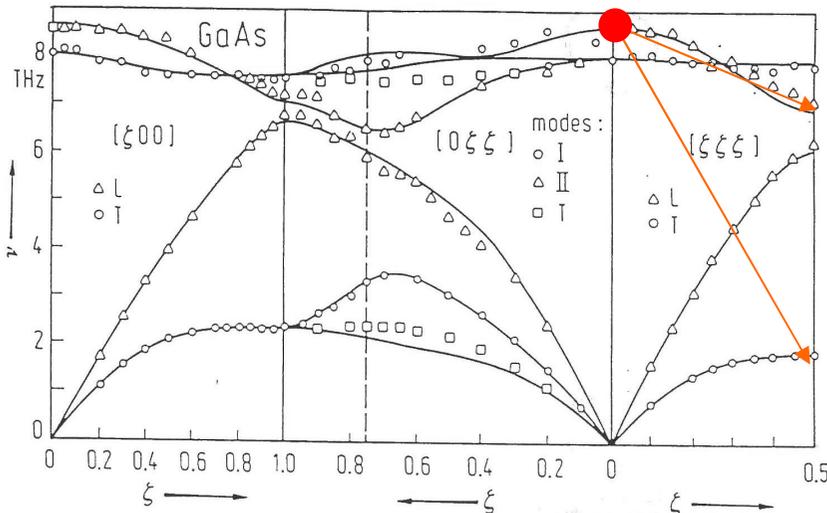
Après diagonalisation de  $V_{X-ph}$  on obtient des états de polaron qui sont *intriqués*:

$$|\psi_{pol_i}\rangle = \alpha_i |S, 0_{\vec{q}}\rangle + \sum_{\vec{q}} \beta_{i\vec{q}} |S, 1_{\vec{q}}\rangle + \sum_{\vec{q}} \gamma_{i\vec{q}} |P, 1_{\vec{q}}\rangle + \sum_{\vec{q}} \delta_{i\vec{q}} |S, 1_{\vec{q}}, 1_{\vec{q}}\rangle + \dots$$



$H_{ph-ph}$  (anharm)

Ces états intriqués sont des états stationnaires de  $H_X + H_{LO}$  (harmonique) +  $V_{X-ph}$ .  
Le couplage au thermostat s'effectue via  $H_{ph-ph}$  (anharm).  
Nous *supposons* que le chemin suivi pour désintégration du phonon est le même que dans GaAs massif: LO  $\rightarrow$  LO + TA



$H_{ph-ph}$  (anharm)

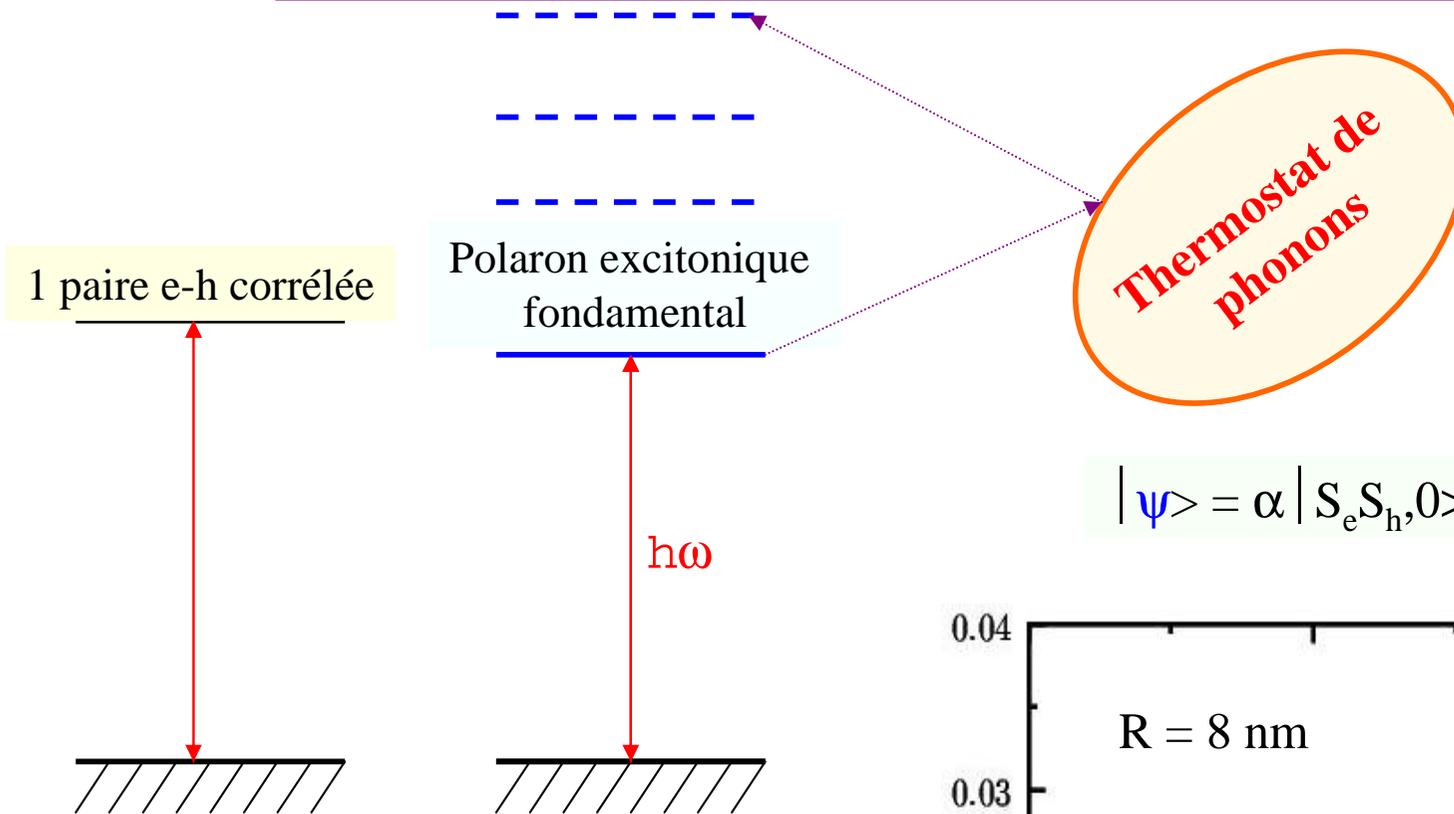
$$\tau_{ph}(LO) \approx qq \text{ ps}$$

Il en résulte une *fenêtre* de *relaxation* pour les polarons

Elle est égale à la *largeur* du *continuum* à deux phonons

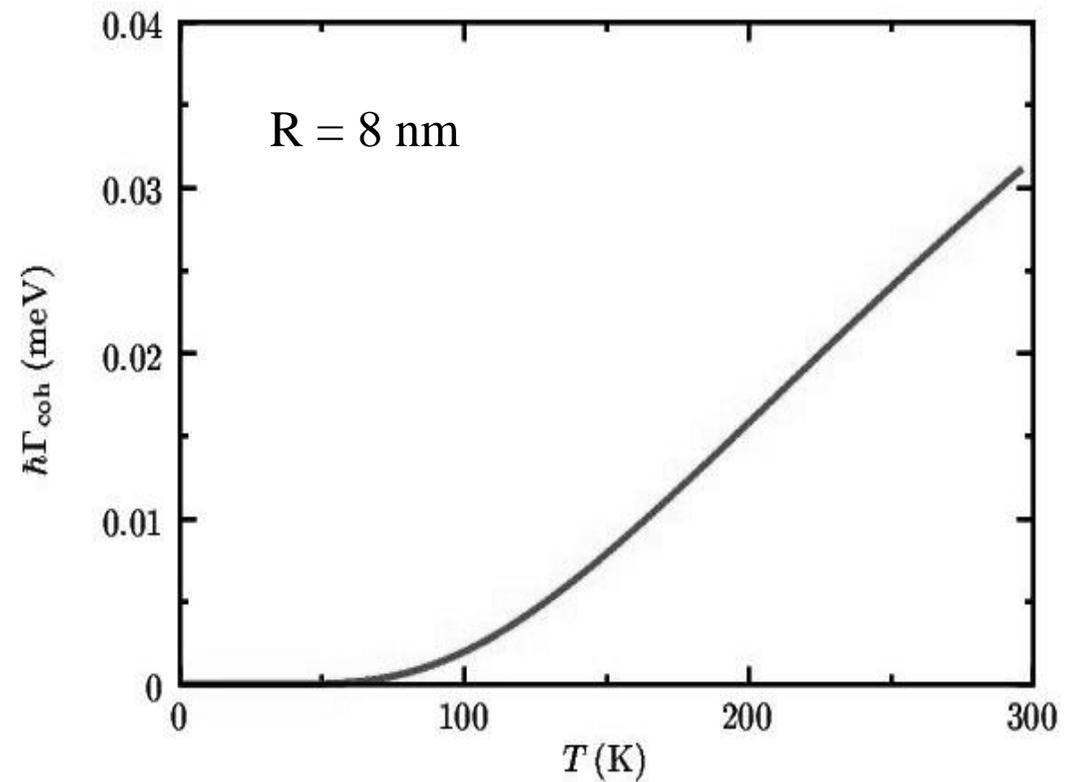
# Amortissement des polarons: vers la décohérence

O. Verzele et al  
Phys. Rev. Lett. 2002



$$|\psi\rangle = \alpha |S_e S_h, 0\rangle + \sum_i \beta_i |i, 1_q\rangle + \dots$$

*L'amortissement* d'un polaron excitonique s'effectue via la *disparition* de sa partie *phonon LO* (dûe à l'anharmonicité).  
 ⇒ Il existe un mécanisme de fuite *thermo-activé* depuis l'état fondamental vers les états de polarons excités



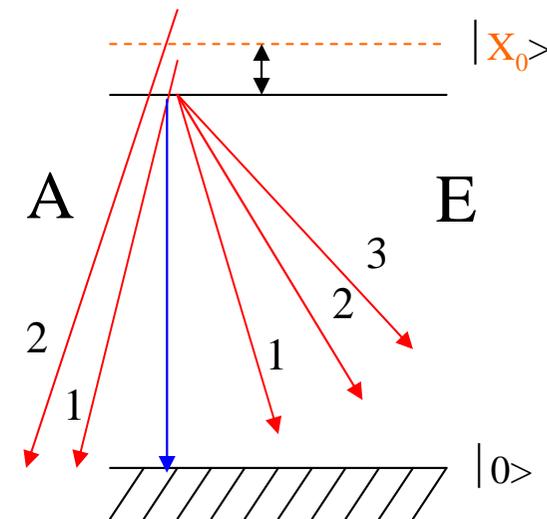
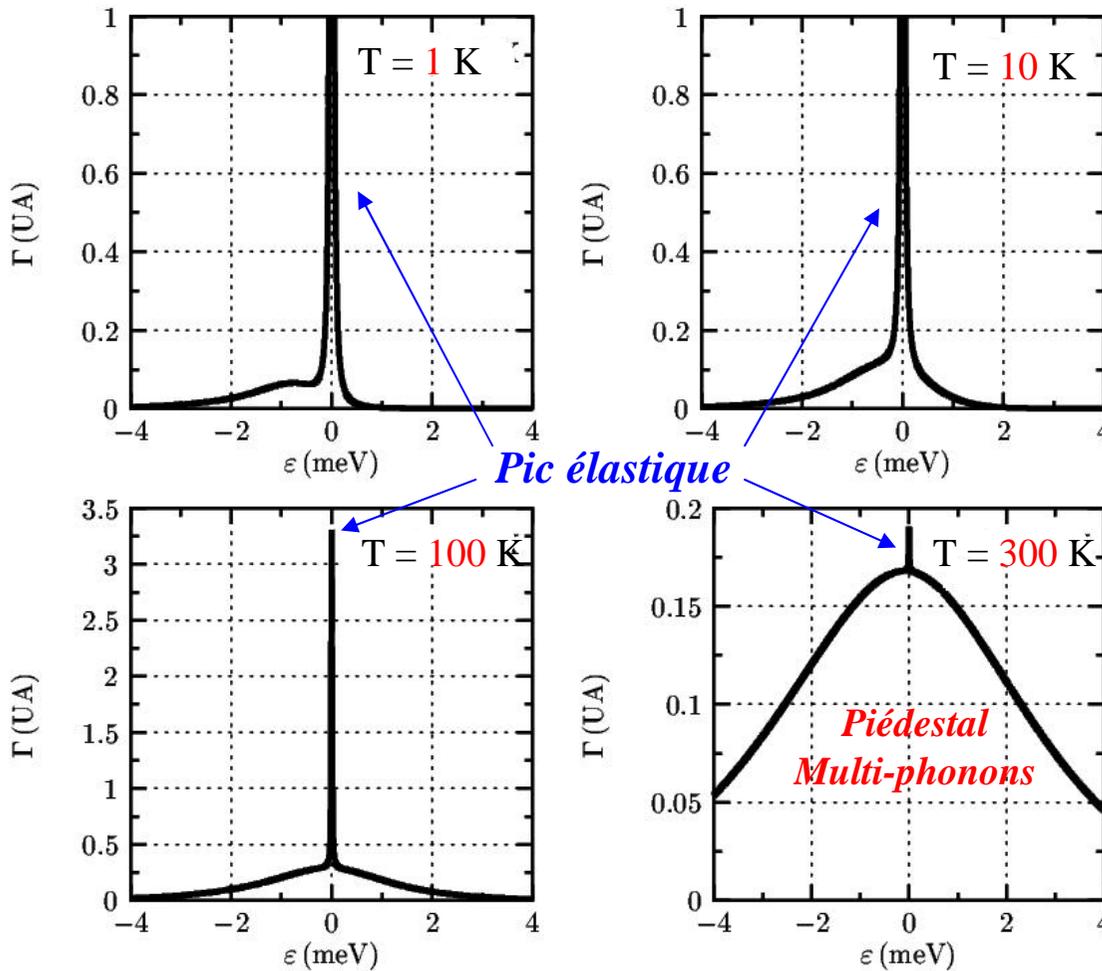
# Phonons acoustiques

Couplage  $X$ -phonons *acoustiques* dans le premier état *excité* du cristal.

$$\hbar\omega_{\mathbf{q}} \ll X_n - X_0 \Rightarrow \text{Huang - Rhy's (= bosons indépendants) } \textit{exact}$$

$$H = (\varepsilon_0 - i\Gamma_0/2) |X_0\rangle\langle X_0| + \sum_{\mathbf{q}} (\hbar\omega_{\mathbf{q}} - i\gamma_{\mathbf{q}}/2)(n_{\mathbf{q}} + 1/2) + \sum_{\mathbf{q}} D_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^{\dagger} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} + D_{\mathbf{q}}^* a_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}$$

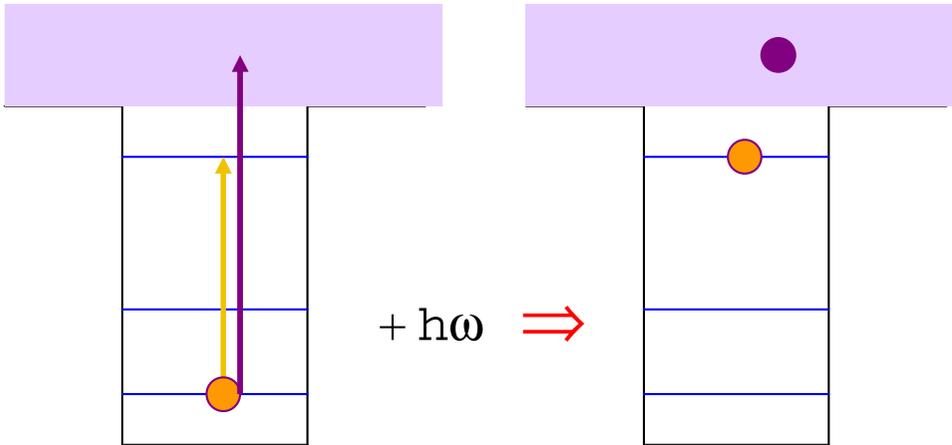
$\Rightarrow$  PL =  
pic *élastique* + *piédestal multi-phonons*



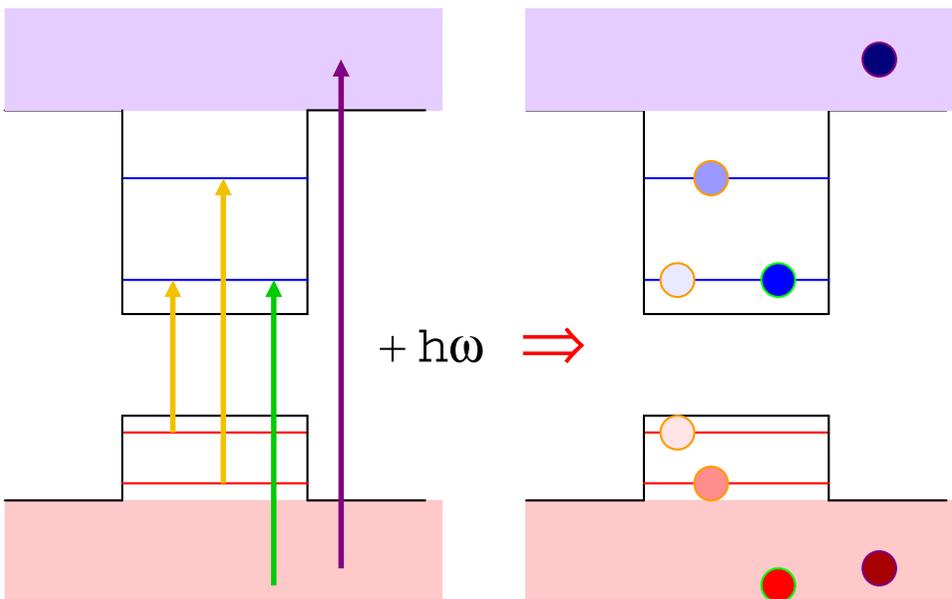
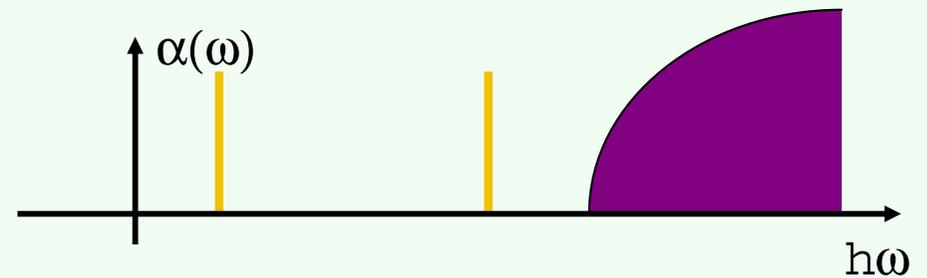
O. Verzelen, thèse 2002

$$\Gamma_{\text{OHWHM}} = 10 \mu\text{eV} \quad 10000 \text{ modes de phonons LA}, \quad N_{\text{max}} = 30$$

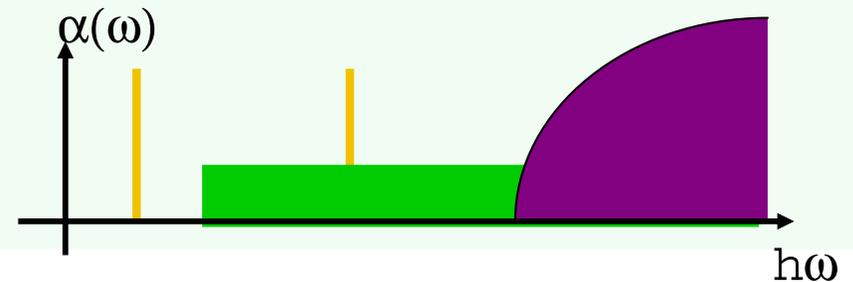
# Les limites du modèle du Macro - atome II: la nature de l'excitation optique



Dans un atome monovalent l'electron *pré-existe* à l'excitation.  $\Rightarrow$  Modèle à *un porteur*.  
*Spectre discret* suivi d'un *continuum*.



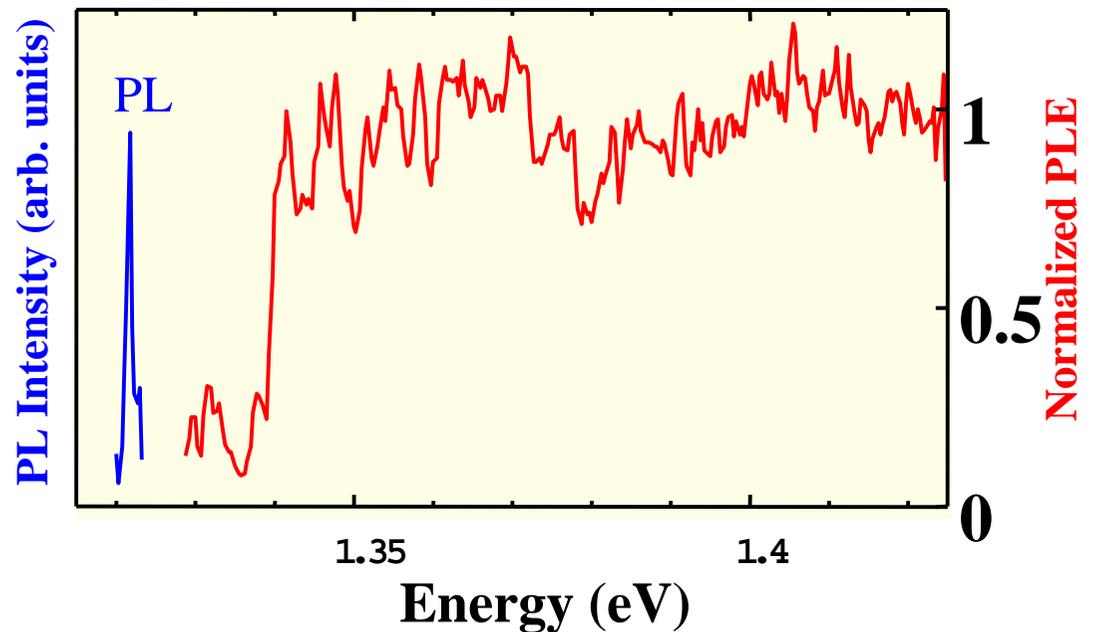
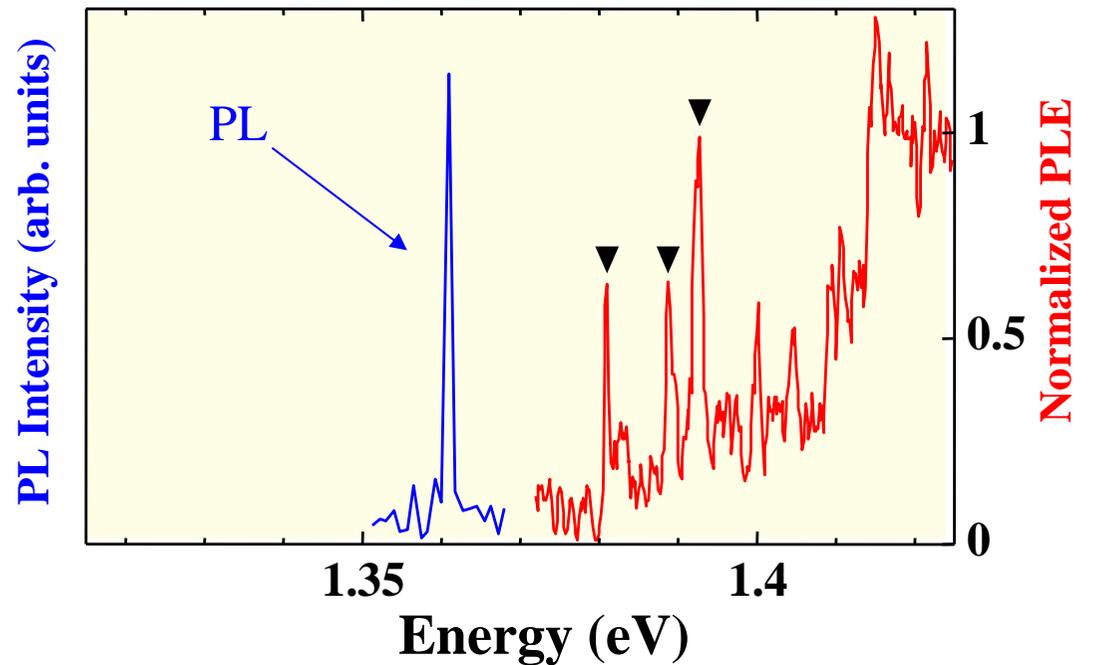
Dans une boîte, il n'y a *pas de porteur* avant excitation  $\Rightarrow$  Un modèle de paires est nécessaire.  
*Spectre discret* superposé à un *continuum* suivi d'un *continuum*.



Les *transitions excitées* des boîtes quantiques apparaissent souvent superposées à un *fond continu* qui est *inexplicable* dans un modèle de *macro-atome*.

Le fond continu dépend de la boîte (position, intensité) et peut recouvrir la transition P-P

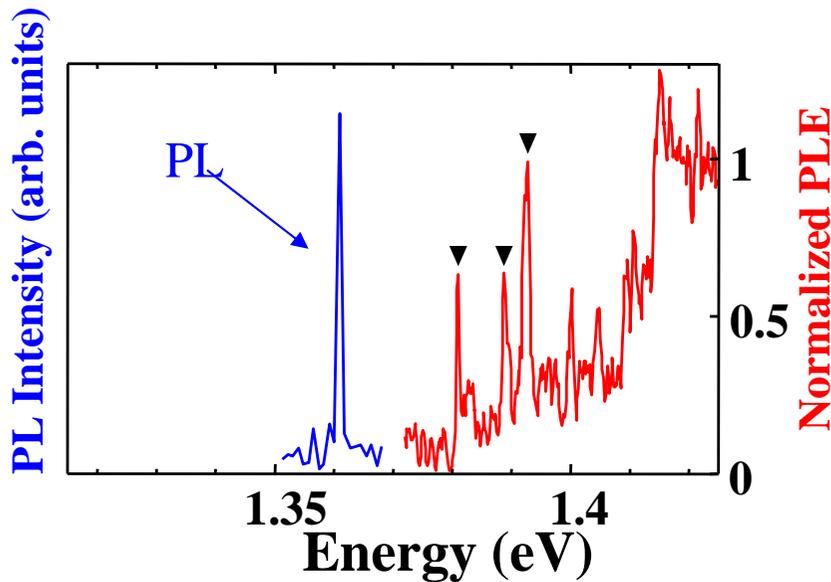
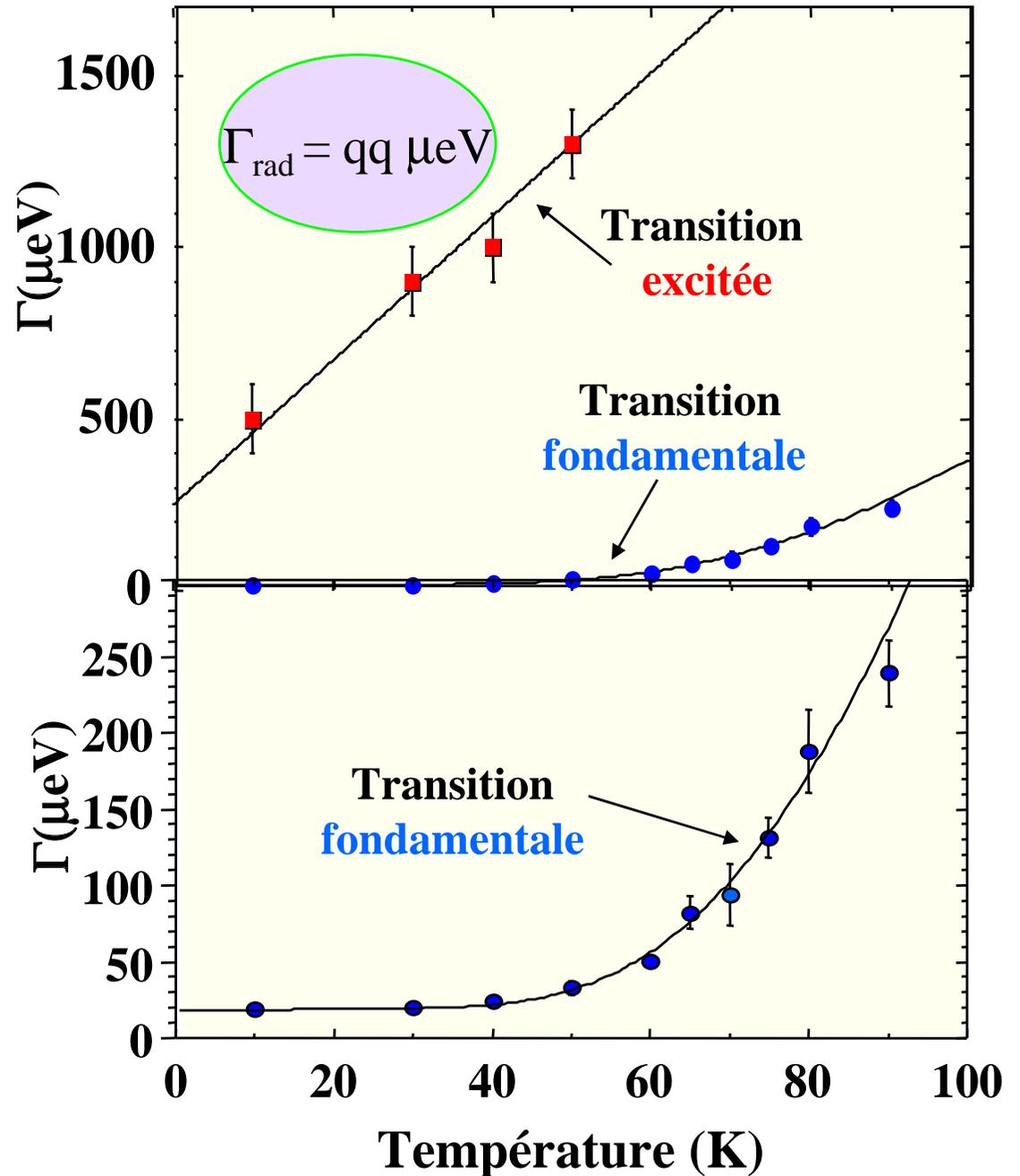
C. Kammerer et al  
Phys. Rev. B65, 033313 (2001)



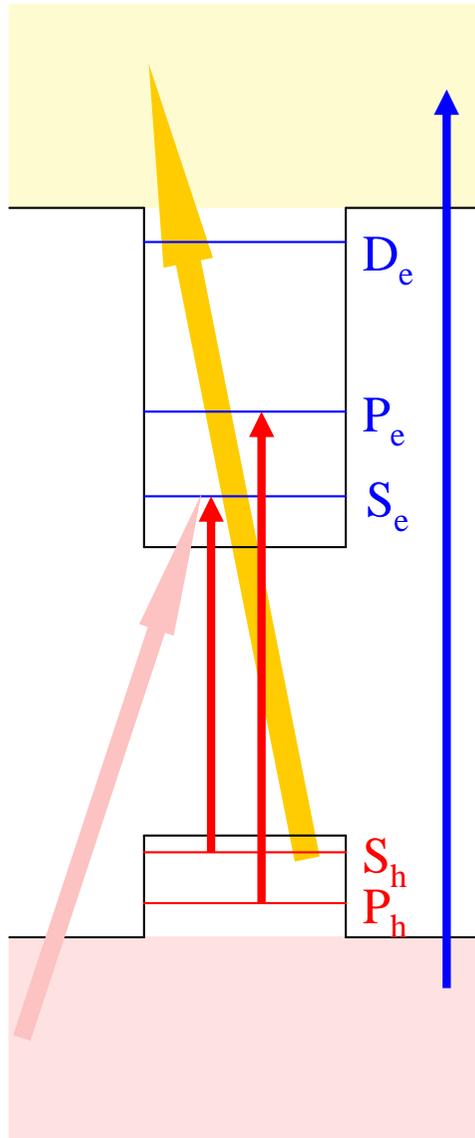
# Evidence de grandes largeurs de raie pour des boîtes uniques

C. Kammerer et al Phys. Rev. B65, 033313 (2001)

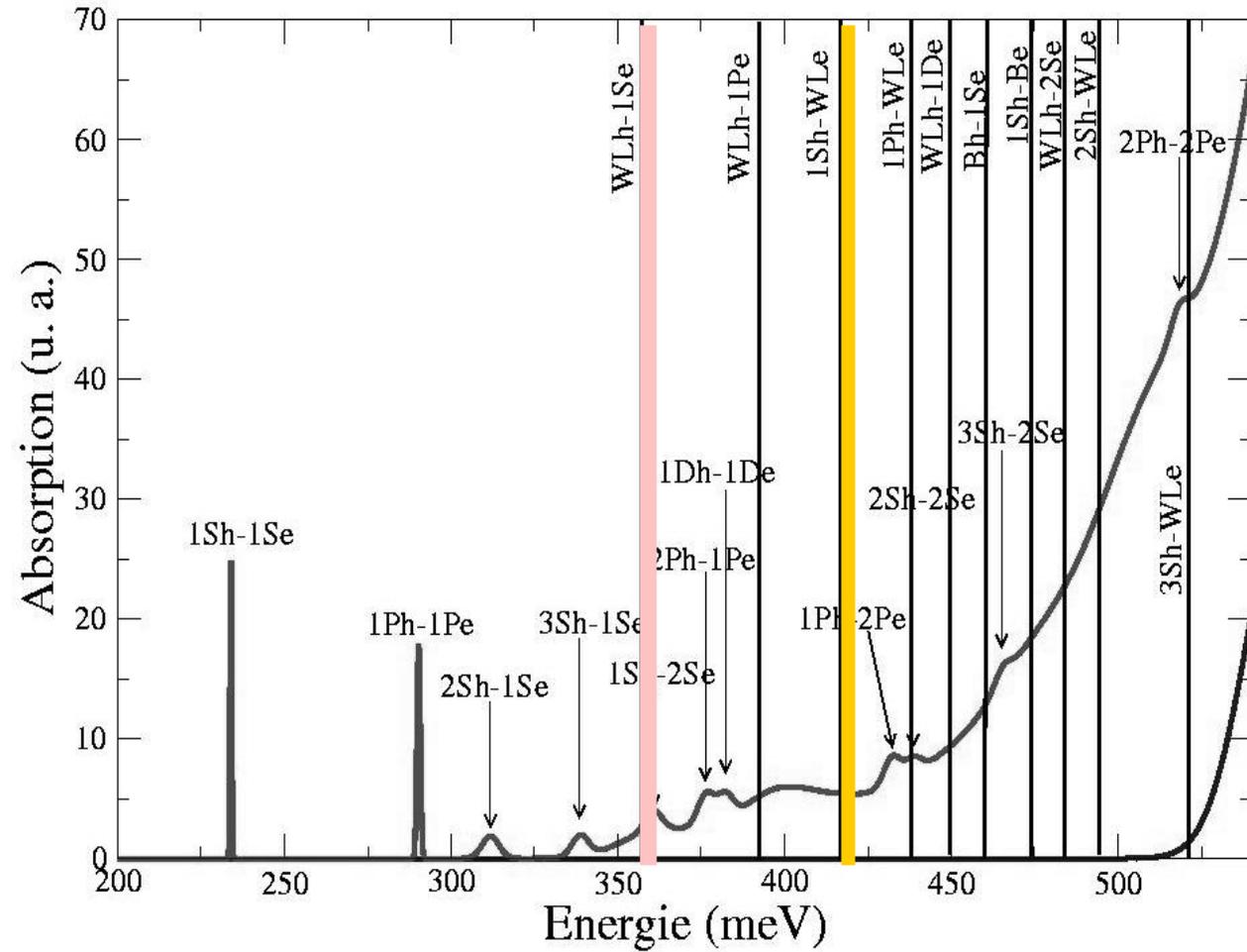
L'étude par corrélations interférométriques de la *largeur des raies* de boîtes quantiques uniques montre une *croissance* des  $\Gamma$  avec la *température*. Pour les *états excités* cette croissance est *linéaire* ( $\Rightarrow$  phonons *acoustiques*)  $\Gamma$  peut être aussi important que dans des puits quantiques ( $\Rightarrow$  *continuum d'états finaux* ???).



# Apparition d'un continuum « croisé » superposé aux transitions discrètes



A. Vasanelli et al  
Phys. Rev. Lett. 2002



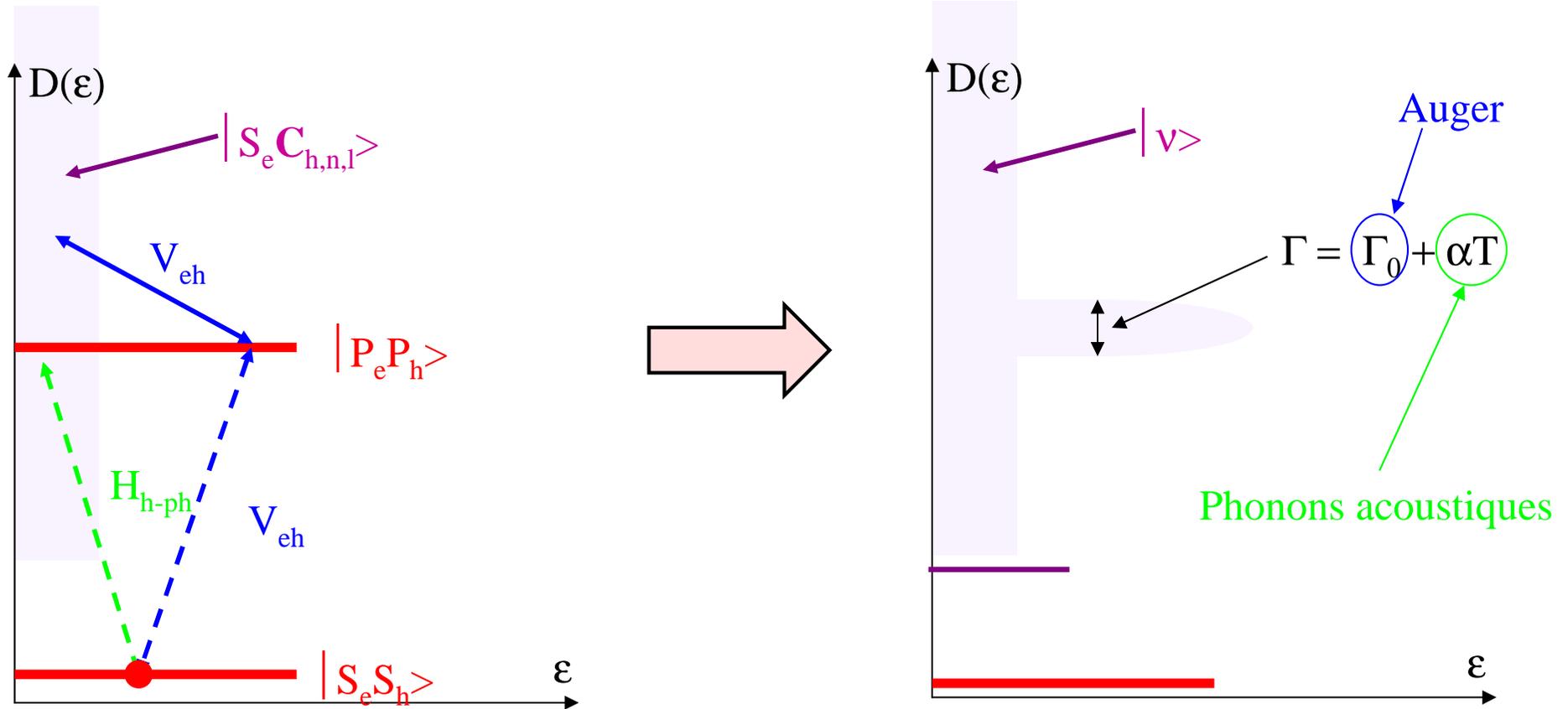
Une *explication* naturelle  
aux forts *élargissements*  
des transitions *excitées*

auto-ionisation

lié→continuum  
assisté par phonons

Elargissement d'un niveau de paire *discret dégénéré* avec un *continuum de dissociation*

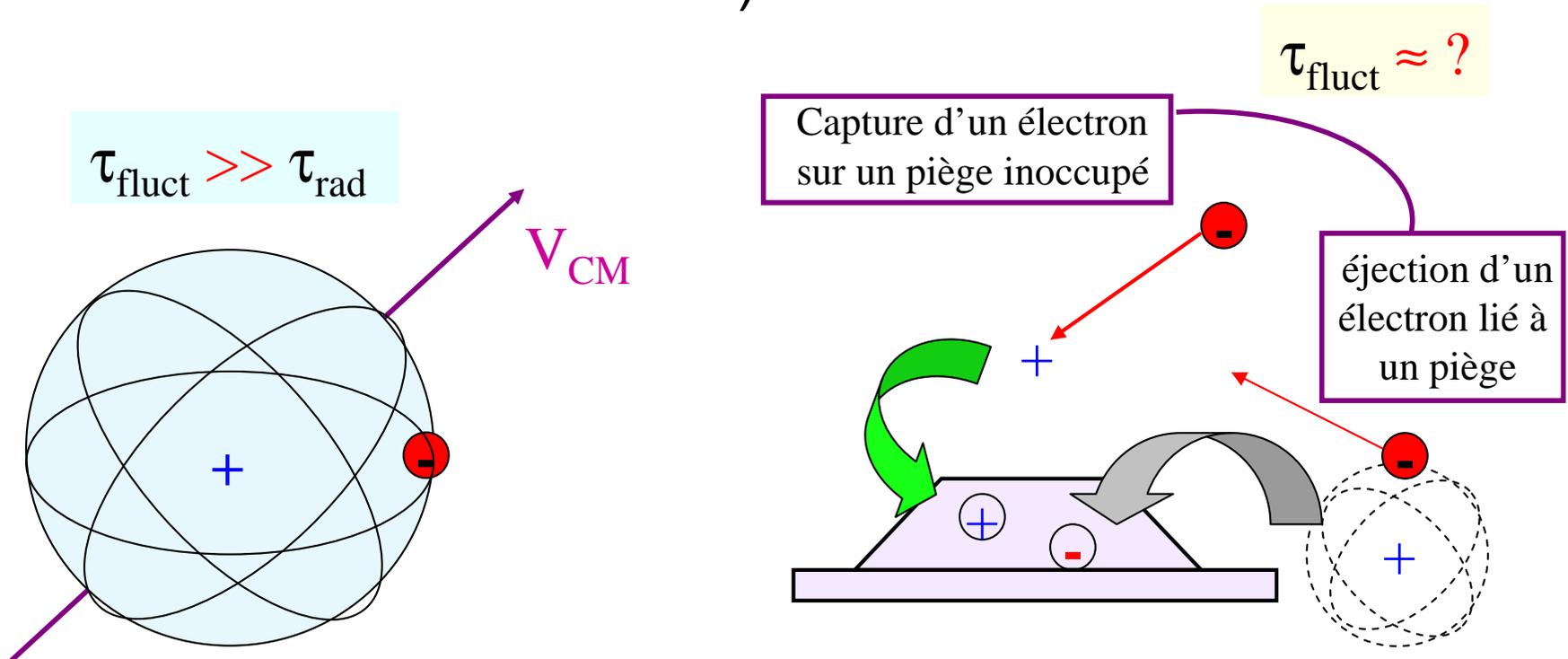
A. Vasanelli et al, Phys. Rev. Lett. (2002)



$$|\psi_i\rangle = a|P_e P_h\rangle + b|S_e S_h\rangle \quad |P_e P_h\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|P_{e+} P_{h-}\rangle + |P_{e-} P_{h+}\rangle] \quad |\psi_f\rangle \approx |S_e C_h\rangle$$

$$\frac{\hbar}{\tau_{nh}} \approx 4\pi|b|^2 C_0 k_B T D_P(\epsilon_i) \quad D_P(\epsilon_i) = \sum_{n,l} \int d^3r |C_{h,n,l}(\vec{r})|^2 |S_h(\vec{r})|^2 \delta(\epsilon_i - E_{h,n,l})$$

# Les limites du modèle du Macro - atome III: l'environnement fluctuant (phonons exclus)



Dans un atome alcalin un électron n'interagit qu'avec le champ électromagnétique: l'élargissement des états excités est *essentiellement radiatif*.

$\mathbf{P}_{CM} + \hbar \mathbf{k}_{ph}$  est un *bon nombre quantique*

Dans une boîte quantique de semiconducteur, l'environnement électrostatique *change constamment*. Les impuretés résiduelles *se chargent* et *se déchargent*, perturbant une paire électron-trou de la boîte.

L'énergie de la paire liée est différente suivant que l'impureté est *vide* ou *occupée* par un électron. Ces perturbations *aléatoires* élargissent les transitions liées-liées et *raccourcissent* le temps de vie des *cohérences*.

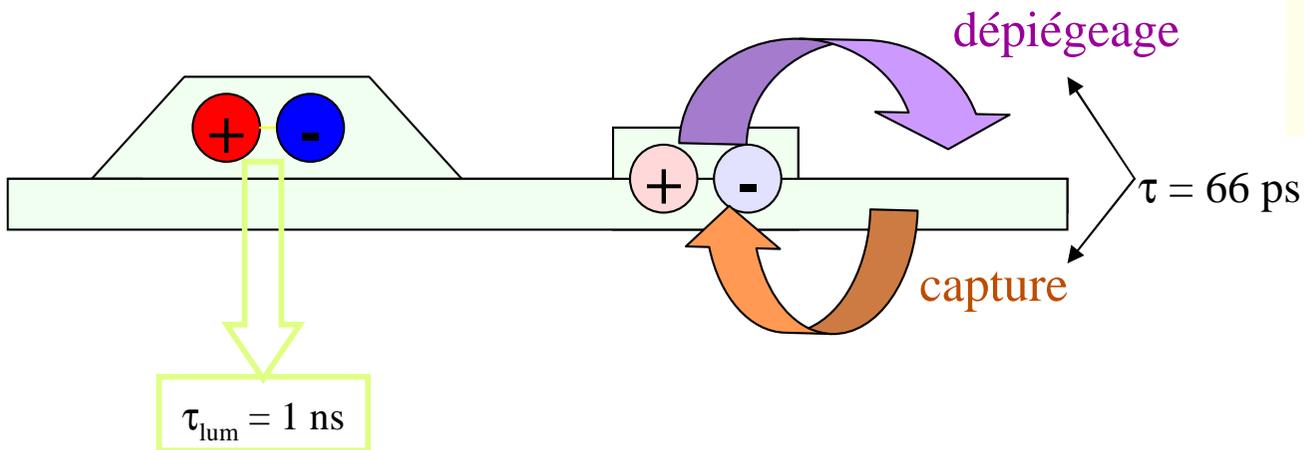
# Décalages et élargissements dus à des fluctuations électrostatiques

A. Jankovic et al, 2002

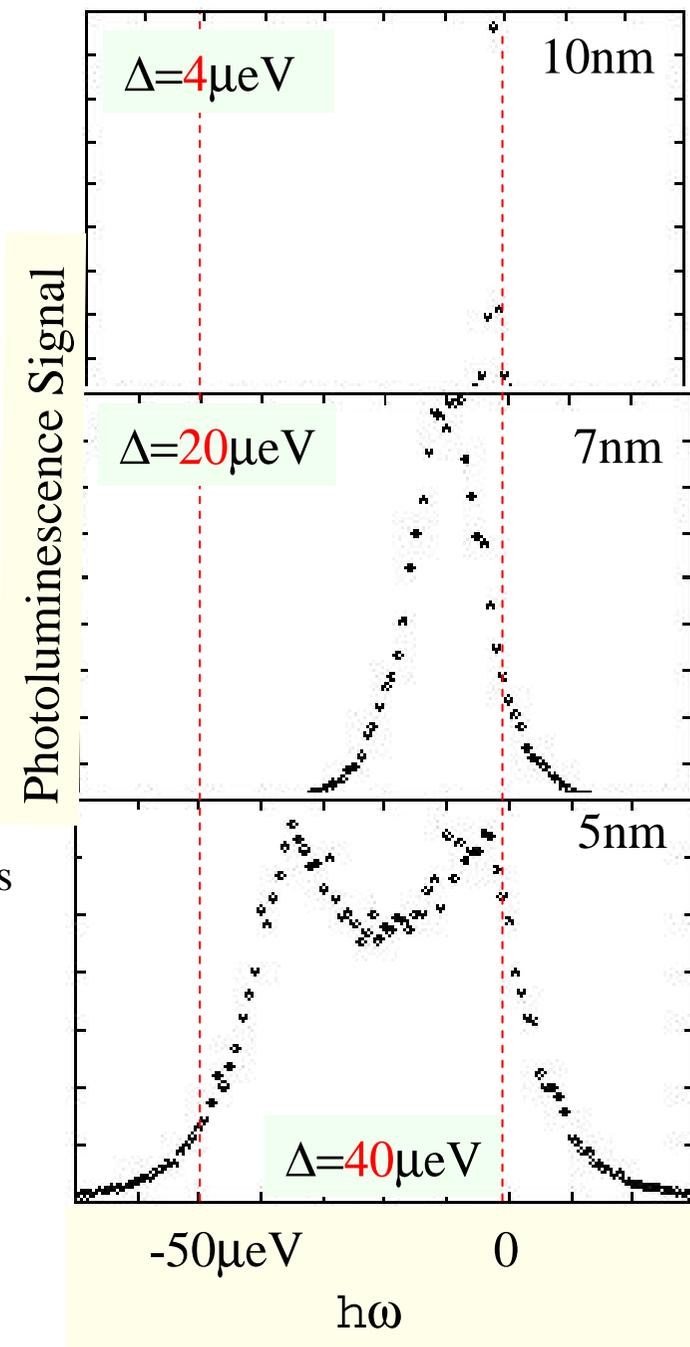
Soit une boîte contenant une paire  $e-h$ .

Un *défaut* de la couche de mouillage ( $R = 5\text{nm}$ ) peut *capturer* une paire  $e'-h'$  ( $\Rightarrow$  interaction *dipole-dipole*  $\Rightarrow \Delta$ ) ou la *relâcher* etc....

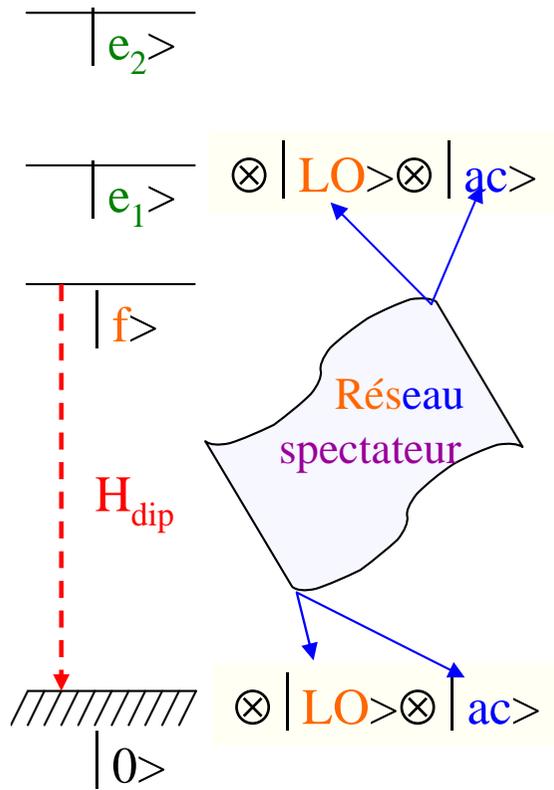
Le signal de photoluminescence de la boîte est calculé en présence d'une perturbation *dipolaire* aléatoire (présence ou absence d'une paire  $e'-h'$  sur le défaut).



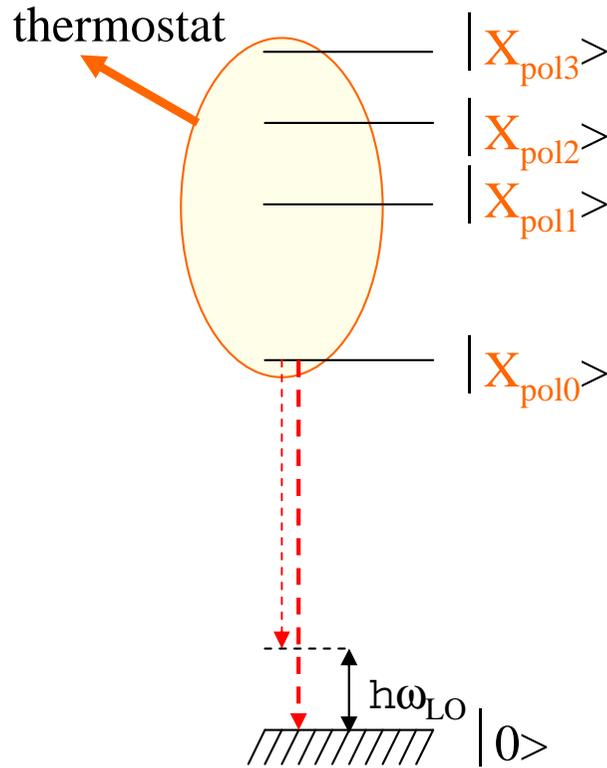
Décalages plus *importants* avec des *impuretés chargées*:  
 $\Delta(\text{charge-dipole}) > \Delta(\text{dipole-dipole})$ .  
 $\Rightarrow$  Corrélation avec les *dopages résiduels*



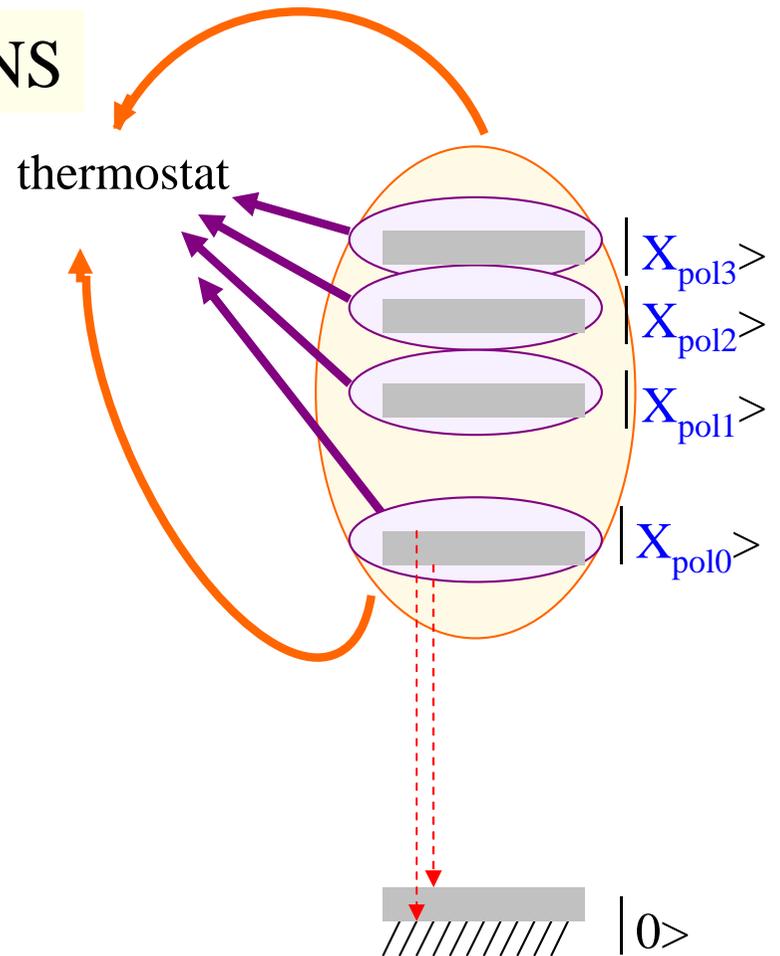
# CONCLUSIONS



Macro - atomes



+ phonons LO

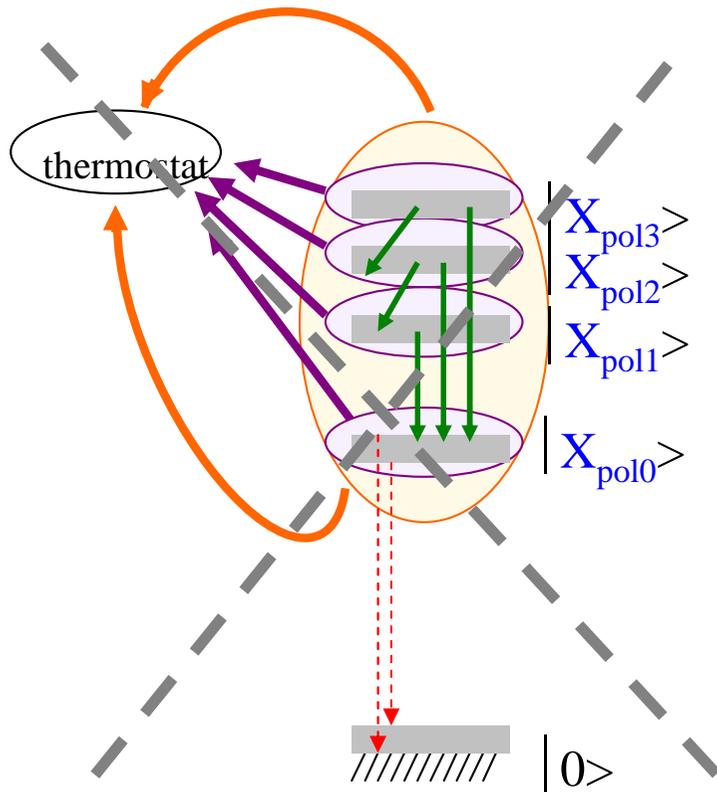


+ phonons acoustiques

Evidemment les véritables boîtes sont plus compliquées et donc décohérentes que le rêve du macro - atome.

Pouvait il en être autrement ?

## En pratique .....



*Ressembler* le plus possible  
à un *système* à *2 niveaux*

Travailler sur les états excités? **NON** car

- \*Désintégration des polarons
- \*Effet Auger + décohérence partielle due aux phonons acoustiques
- \*fuite vers les continums croisés



Même à basse température  $\tau_{coh} \approx qq \text{ ps}$



Travailler sur le *fondamental* ( $X_{pol0}$ )

\*En excitation *résonante*  
Pas de perte de cohérence lors de la relaxation

\*à *basse* ( $T < 50\text{K}$ ) température  
Pic élastique  
Pas de décohérence thermo-activée

\* Sur des échantillons « *purs* »  
Pas de fluctuations électrostatiques