



Titre: Contrôle optique de qubits liés à des centres isoélectroniques
Title: d'azote dans le GaAs

Auteur: Gabriel Éthier-Majcher
Author:

Date: 2016

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Éthier-Majcher, G. (2016). Contrôle optique de qubits liés à des centres
Citation: isoélectroniques d'azote dans le GaAs [Ph.D. thesis, École Polytechnique de
Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/2191/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/2191/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:** Sébastien Francoeur
Advisors:

Programme: Génie physique
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

CONTRÔLE OPTIQUE DE QUBITS LIÉS À DES CENTRES ISOÉLECTRONIQUES
D'AZOTE DANS LE GAAS

GABRIEL ÉTHIER-MAJCHER
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIÆ DOCTOR
(GÉNIE PHYSIQUE)
AOÛT 2016

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

CONTRÔLE OPTIQUE DE QUBITS LIÉS À DES CENTRES ISOÉLECTRONIQUES
D'AZOTE DANS LE GAAS

présentée par : ÉTHIER-MAJCHER Gabriel
en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiæ Doctor
a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M. GODBOUT Nicolas, Ph. D., président
M. FRANCOEUR Sébastien, Ph. D., membre et directeur de recherche
M. KÉNA-COHEN Stéphane, Ph. D., membre
M. KREBS Olivier, Ph. D., membre externe

REMERCIEMENTS

J'aimerais tout d'abord remercier les membres du jury qui ont accepté d'évaluer ce travail. En particulier, j'aimerais remercier mon directeur de recherche, Sébastien Francoeur, qui a été un formidable mentor tout au long de mes études de doctorat. Merci d'avoir été toujours aussi disponible et de m'avoir fait autant confiance. Je me considère privilégié d'avoir pu bénéficier de ton expertise et de tes précieux conseils.

Je tiens à remercier chaleureusement Philippe St-Jean qui a grandement contribué au succès de ce projet et avec qui j'ai eu un plaisir immense à travailler au cours de toutes ces années. Merci pour toutes les conversations que nous avons eues qui m'ont permis d'affûter mon esprit scientifique, je n'aurais pu espérer avoir un meilleur collègue de travail. Mais surtout, merci Philippe d'être un si bon ami.

Merci aussi à tous les collègues de travail que j'ai eu le plaisir de côtoyer au fil des ans. J'aimerais souligner la contribution d'Alaric Bergeron, qui a bâti un montage expérimental essentiel à la réalisation des expériences présentées. Merci à Stéphane Marcet qui m'a initié au travail de laboratoire avec beaucoup de rigueur et de patience. Merci également à Claudéric Ouellet Plamondon, Maxime Desjardins-Carrière, Patrick Lavoie, Gabriel Monette, Alexandre Favron, Anne-Laurence Phaneuf-l'Heureux, Jean-Francis Germain et John Ibrahim ; travailler avec vous fût pour moi fort agréable.

De plus, j'aimerais remercier tous mes collègues de bureau. Je garderai d'excellents souvenirs de ces années passées avec vous. Un merci particulier à Stéphane Virally, qui a toujours été disponible pour répondre à mes questions et pour partager ses connaissances en optique et sur bien d'autres sujets. Merci également à Victor Lambin-Iezzi et Sébastien Loranger.

Merci finalement à ma famille qui a toujours cru en moi et qui m'a supporté inconditionnellement au cours de mes études. Merci à mes parents, Nicole et Mieczyslaw, à ma soeur Catherine et à son conjoint Xavier. Merci aussi à Laurence pour avoir rendu ma vie si merveilleuse.

RÉSUMÉ

Le traitement de l'information quantique est un domaine de recherche actuellement en pleine effervescence car il laisse entrevoir une révolution dans notre façon de traiter et d'échanger de l'information. D'une part, l'ordinateur quantique promet de résoudre des problèmes comme la factorisation d'un polynôme de façon beaucoup plus efficace qu'un ordinateur classique. D'autre part, les communications quantiques promettent l'échange d'information de façon fondamentalement inviolable. Afin de tirer pleinement profit de ces nouvelles technologies, il sera avantageux de construire des réseaux quantiques. Dans un tel réseau, des processeurs quantiques, les noeuds, seront connectés par des photons voyageant dans des fibres optiques. Les réseaux quantiques permettront de déployer les communications quantiques à grande échelle et de créer des super-ordinateurs quantiques.

La réalisation de réseaux quantiques nécessitera des interfaces optiques pouvant échanger l'information de façon cohérente entre un qubit (bit d'information quantique) et un photon. L'implémentation de telles interfaces dans un système physique s'avère un important défi scientifique et technologique. Or, les systèmes actuellement envisagés à cette fin souffrent d'un faible couplage avec la lumière ou encore de grandes inhomogénéités, constituant des obstacles à la réalisation de réseaux à grande échelle.

Dans cette thèse, le potentiel des centres isoélectroniques pour réaliser des interfaces optiques est évalué. Deux types de qubits liés à des paires d'azote dans le GaAs sont considérés : les qubits excitoniques et les qubits de spin électronique, contrôlables par l'intermédiaire d'excitons chargés. Le contrôle optique complet des qubits excitoniques est démontré, ce qui constitue la première réalisation du genre dans les centres isoélectroniques. L'observation d'excitons chargés dans ce système, liant à la fois des trous lourds et des trous légers, laisse entrevoir de nouvelles possibilités afin de manipuler des spins électroniques.

Les excitons et excitons chargés liés aux paires d'azote sont étudiés par la photoluminescence résolue spatialement. Le contrôle des qubits excitoniques est réalisée à l'aide d'impulsions laser résonantes avec un état excitonique et l'état du qubit est lu par sa fluorescence en résonance. Une expérience de rotations de Rabi est réalisée pour démontrer un contrôle sur la population du qubit. Cette expérience permet d'extraire un moment dipolaire moyen de 27 D pour l'exciton. De plus, elle permet de conclure que le déphasage induit par l'excitation, caractérisé par une constante $K_2 < 4$ fs, est faible dans les centres isoélectroniques étant donné leur faible potentiel de déformation. Pour démontrer un contrôle complet de l'exciton, c'est-à-dire un contrôle sur sa population et sa phase, une expérience d'interférence de Ramsey

est réalisée. Cette expérience permet de déterminer un temps de cohérence de 112 ps pour l'exciton mesuré.

En plus de permettre le contrôle d'un qubit, un laser résonant peut également modifier l'énergie des états excitoniques. La fluorescence en résonance provenant d'un exciton neutre est donc mesurée en utilisant un laser continu. À haute puissance d'excitation, un doublet d'Autler-Townes est distinguable dans le spectre de fluorescence, ce qui est caractéristique d'états excitoniques habillés. La séparation en énergie de ce doublet permet de nouveau de conclure que le moment dipolaire des excitons liés aux centres isoélectroniques est très élevé.

Les centres isoélectroniques ont la propriété de lier à la fois des trous lourds et des trous légers, ce qui s'avère avantageux pour initialiser, contrôler et lire un spin électronique en un essai. Une procédure théorique, tirant profit de la structure fine des excitons chargés, est proposée pour réaliser ces trois étapes dans une seule configuration du champ magnétique, ce qui n'est pas possible dans un système ne liant que des trous lourds. Cette procédure repose sur l'application d'un champ magnétique dans une orientation judicieuse afin d'obtenir 1) un système Λ formé par les états trous légers pour initialiser et contrôler le spin et 2) des transitions de recyclage impliquant les états trous lourds nécessaires à la lecture du spin. La qualité des transitions de recyclage est évaluée en calculant les forces d'oscillateurs des excitons chargés.

Un centre isoélectronique formé d'une paire d'azote de symétrie C_s est observé pour la première fois dans le GaAs, émettant à 1505.1 meV. Ce centre peut lier à la fois des excitons neutres et des excitons chargés. Par l'analyse de la structure fine des excitons neutres, il est déterminé que d'une paire à l'autre, l'état excitonique de basse énergie peut être composé majoritairement de trous lourds ou de trous légers. L'analyse de la structure fine de l'exciton chargé permet de conclure que celui-ci est chargé négativement. De plus, cette analyse permet d'affirmer qu'il est compatible avec la procédure théorique d'initialisation, de contrôle et de lecture du spin proposée. Un rapport d'embranchement entre les transitions de recyclage et les transitions interdites de l'exciton chargé supérieur à 400 est prédit pour un champ de magnétique de 8 T, ce qui devrait permettre la lecture du spin en un essai.

Ainsi, parce qu'ils possèdent un élargissement inhomogène très faible, un fort couplage avec la lumière et parce qu'ils lient des excitons chargés avec des trous lourds et légers quasi-dégénérés, les centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs pourraient s'avérer une alternative intéressante aux boîtes quantiques, aux centres NV dans le diamant ou aux centres de couleur dans le SiC pour la réalisation d'interfaces optiques. Les résultats présentés constituent les premières démonstrations de traitement de l'information quantique dans un système jusqu'à maintenant peu étudié, mais dont le potentiel est grand.

ABSTRACT

In recent years, the promises of quantum information has stimulated a lot of research in the fields of physics, information theory and engineering as it could lead to a revolution on how we exchange and process information. On the one hand, quantum computers will perform tasks such as factoring polynomials much more efficiently than classical computers. On the other hand, quantum information will allow secure communication guaranteed by the laws of quantum mechanics. Building quantum networks will be crucial to fully exploit these new technologies. Quantum networks are formed from computing nodes connected by photons traveling through optical fibers. They could lead to global quantum communication and to the creation of distributed quantum computers.

An optical interface coherently transferring information between a stationary qubit (quantum bit) and a flying qubit, a photon, is the cornerstone of a quantum network. The implementation of such an interface in a physical system represents an important scientific and technological challenge. Physical systems that are currently considered to build these interfaces either suffer from a weak coupling to light or high inhomogeneities, which impedes the development of scalable quantum networks.

In this thesis, isoelectronic centers are proposed as a potential alternative to the realization of optical interfaces. Two types of stationary qubits bound to nitrogen pairs in GaAs are considered : exciton qubits and electron spin qubits. The latter qubits can be controlled optically using charged excitons as intermediary states. The complete optical control of exciton qubits is demonstrated, which is the first example of quantum information processing in isoelectronic centers. Then, it is shown that light- and heavy-hole charged excitons can be bound to nitrogen pairs in GaAs, which could lead to new powerful control schemes for spin qubits.

Excitons and charged excitons are studied using spatially resolved photoluminescence. A Rabi rotation experiment is performed to demonstrate the optical control on the population of exciton qubits : a resonant laser pulse controls the qubit state, which can then be read by measuring its fluorescence. A mean exciton dipole moment of 27 D is found from this experiment. Interestingly, excitation induced dephasing, which is a phenomenon consistently observed in other excitonic systems, is characterized by a rather small constant $K_2 < 4$ fs in isoelectronic centers due to the low deformation potential of nitrogen pairs. This could lead to the fast gating of excitons with higher fidelity. To show the complete quantum control of the exciton, one needs to control its population and its phase. The control over the phase

is realized by a Ramsey interference experiment. An exciton coherence time of 112 ps is extracted from this experiment.

The resonant excitation of an exciton can not only control its quantum state, but also modify its energy. Thus, resonance fluorescence from an exciton is also measured using continuous-wave excitation. At high excitation power, the Autler-Townes doublet, characteristic of dressed states, appears in the fluorescence spectrum. The important splitting of the doublet at relatively low power confirms the high dipole moment of the exciton.

Isoelectronic centers can bind both light- and heavy-hole states, which could prove to be an important ingredient to realize the initialization, control and single-shot readout of an electron spin qubit. In a system binding only heavy-holes, those three steps require mutually incompatible magnetic field configurations. Here, a theoretical proposal taking advantage of the charged exciton fine structure is given to realize the three steps in a single magnetic field configuration. The key of this proposal is to apply the magnetic field in the optimal direction to obtain 1) a Λ system formed by light-hole states used to initialize and control the spin qubit and 2) cycling transitions originating from heavy-hole states to perform single-shot spin readout. The quality of this readout is evaluated by calculating the branching ratio between forbidden and cycling transitions.

An isoelectronic center formed by a pair of nitrogen atoms in C_s symmetry is observed for the first time in GaAs, emitting at 1505.1 meV. This center can bind both excitons and charged excitons. Interestingly, it is found by analyzing the exciton fine structure that from one pair of C_s symmetry to another, the lowest exciton energy state can be predominantly a light- or a heavy-hole state. It is also found from the charged excitons fine structure that the extra charge bound to this complex is negative. Moreover, from this analysis, it is concluded that the C_s symmetry charged exciton is compatible with the initialization, control and readout scheme proposed. A branching ratio of 400 is predicted between the allowed cycling transition and the forbidden transition when an 8 T magnetic field is applied. This branching ratio should allow single-shot readout of the electron spin.

Thus, because of their strong coupling to light, low inhomogeneous broadening and because they can bind both light- and heavy-hole charged excitons, nitrogen isoelectronic centers in GaAs could prove to be an interesting alternative to quantum dots, NV centers in diamond or color centers in SiC to implement optical interfaces. In this thesis, the first demonstration of quantum information processing is realized within this little-known system having a high potential.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	iii
RÉSUMÉ	iv
ABSTRACT	vi
TABLE DES MATIÈRES	viii
LISTE DES TABLEAUX	xi
LISTE DES FIGURES	xiii
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	xxiii
LISTE DES SYMBOLES	xxiii
LISTE DES ANNEXES	xxix
CHAPITRE 1 INTRODUCTION	1
1.1 Bits quantiques	3
1.1.1 Définition	3
1.1.2 Critères de DiVincenzo	4
1.1.3 Interfaces optiques - critères importants	6
1.2 Candidats envisagés pour réaliser des interfaces optiques	6
1.2.1 Boîtes quantiques auto-assemblées	7
1.2.2 Centres NV dans le diamant	8
1.2.3 Centres de couleur dans le SiC	9
1.2.4 Comparaison entre les systèmes	9
1.3 Plan de la thèse	10
CHAPITRE 2 LES CENTRES ISOÉLECTRONIQUES	12
2.1 Mécanismes de liaison	14
2.2 Configurations des centres isoélectroniques	15
2.2.1 Les centres isoélectroniques d'azote dans le GaP	15
2.2.2 Les centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs	17
2.2.3 Comparaison entre les deux matériaux hôtes	19

2.3	Structure fine	20
2.3.1	Polarisations	21
2.3.2	Hamiltoniens	31
2.3.3	Modélisation d'une paire d'azote dans le GaAs	35
2.4	Configurations de charge	37
2.5	Conclusion	41
CHAPITRE 3 CONTRÔLE COHÉRENT D'UN QUBIT EXCITONIQUE		42
3.1	Problème de Rabi	42
3.1.1	Hamiltonien	43
3.1.2	Fonction d'onde	45
3.1.3	Formalisme de la matrice densité	46
3.2	Excitation pulsée	47
3.2.1	Rotations de Rabi	47
3.2.2	Interférence de Ramsey	48
3.3	Méthodologie expérimentale	49
3.3.1	Échantillon étudié	49
3.3.2	Choix du système	50
3.3.3	Lecture du qubit	51
3.3.4	Montage expérimental	53
3.4	Résultats	55
3.4.1	Temps de vie	56
3.4.2	Rotations de Rabi et moment dipolaire	59
3.4.3	Déphasage induit par l'excitation	63
3.4.4	Interférence de Ramsey	64
3.4.5	Temps de cohérence	65
3.5	Conclusion	67
CHAPITRE 4 ÉTATS EXCITONIQUES HABILLÉS		69
4.1	Effet Stark AC	69
4.2	Méthodologie expérimentale	71
4.3	Fluorescence en résonance excitée par un laser continu	74
4.4	Conclusion	81
CHAPITRE 5 CONTROLE COHÉRENT D'UN SPIN À L'AIDE D'EXCITONS CHARGÉS TROUS LOURDS ET TROUS LÉGERS		82
5.1	Définitions	83

5.1.1	Transition Raman stimulée	83
5.1.2	Lecture en un essai	85
5.2	Règles de sélection d'un système trous lourds	86
5.2.1	Configuration de Faraday	87
5.2.2	Configuration de Voigt	87
5.3	Règles de sélection d'un système trous lourds et trous légers	88
5.3.1	Hamiltoniens C_s	88
5.3.2	Règles de sélection à champ nul	89
5.3.3	Règles de sélection à champ magnétique élevé	90
5.4	Initialisation, contrôle et lecture du spin	95
5.4.1	Initialisation	96
5.4.2	Contrôle cohérent	98
5.4.3	Lecture	100
5.5	Conclusion	101
CHAPITRE 6 EXCITONS ET EXCITONS CHARGÉS LIÉS À DES PAIRES D'AZOTE		
	DE SYMÉTRIE C_s	103
6.1	Centre de symétrie C_s en macro-PL	104
6.2	Excitons neutres	105
6.2.1	Structure fine en symétrie C_s	105
6.2.2	Méthodologie expérimentale	107
6.2.3	Exciton 1 - axe x dans le plan	110
6.2.4	Exciton 2 - axe x hors plan	112
6.2.5	Discussion de la configuration du centre	116
6.3	Excitons chargés	117
6.3.1	Magnéto-luminescence d'excitons chargés	118
6.3.2	Discussion de la configuration de l'exciton chargé	125
6.3.3	Initialisation, contrôle et lecture d'un spin à l'aide de l'exciton chargé C_s	126
6.4	Conclusion	128
CHAPITRE 7 CONCLUSION		
RÉFÉRENCES		
ANNEXES		

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1	Comparaison des propriétés des candidats à la réalisation d'interfaces optiques	10
Tableau 2.1	Énergie d'émission des différents centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs. La correspondance entre les notations des figures 2.2 et 2.3 est donnée.	18
Tableau 2.2	Exemple de base de fonctions excitoniques orthonormales	23
Tableau 2.3	Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie D_{2d} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire	24
Tableau 2.4	Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie C_{3v} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire. Les exposants (1) et (2) indiquent des polarisations circulaires droite et gauche.	27
Tableau 2.5	Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie C_{2v} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire	28
Tableau 2.6	Nombre de transitions et polarisations pour les différentes configurations de paires d'azote analysées (np signifie non-polarisée) lorsque l'axe optique est selon $[001]$	29
Tableau 3.1	Fonctions d'onde d'excitons de symétrie C_{2v} pour une paire d'azote ne présentant que deux transitions.	57
Tableau 6.1	Fonctions de base excitoniques en symétrie C_s , leur représentation et leurs éléments de matrice d'interaction dipolaire selon (x,y,z), les axes définis par rapport à la paire d'azote. La polarisation associée à chaque état est indiquée par l'exposant entre parenthèses.	107
Tableau 6.2	Polarisations des transitions provenant des états se transformant comme Γ_1 et Γ_2 en symétrie C_s selon la direction de la paire lorsque l'axe x est dans le plan et hors plan	108
Tableau 6.3	Paramètres d'échange et de champ cristallin de la paire d'azote présentée à la figure 6.4.	111
Tableau 6.4	Paramètres d'échange et de champ cristallin de la paire d'azote présentée à la figure 6.5.	113
Tableau 6.5	Paramètres de champ cristallin et d'interaction avec le champ magnétique de l'exciton chargé présenté à la figure 6.11.	124
Tableau B.1	Table des caractères du groupe de symétrie C_s	147
Tableau B.2	Table de multiplication du groupe de symétrie C_s	148

Tableau B.3	Représentation des matrices 4 x 4 et 2 x 2 linéairement indépendantes en symétrie C_s . K^\pm indique la symétrie temporelle.	148
-------------	--	-----

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	(a) Réseau de communications quantiques, permettant de générer un état intriqué entre les deux nœuds en vert. Chaque nœud intermédiaire, en noir, est un répéteur quantique. Les canaux de communication sont illustrés par des traits ondulés. (b) Réseau de calcul quantique. La possibilité de lier des processeurs via des canaux quantiques augmente considérablement les capacités d'un ordinateur quantique distribué.	2
Figure 1.2	Sphère de Bloch. Représentation graphique de l'état d'un système quantique à deux niveaux, où θ représente la population et ϕ la phase relative entre les niveaux.	4
Figure 1.3	(a) La croissance d'InAs sur du GaAs peut générer des îlots formant des boîtes quantiques. (b) Structure de bande de la boîte quantique. À l'intérieur de la boîte, les électrons et les trous sont confinés. La présence d'un électron et d'un trou forme un exciton.	7
Figure 1.4	Schématisation d'un centre NV dans le diamant, composé d'un atome d'azote substitutionnel et d'une lacune (notée V pour <i>vacancy</i>). . . .	8
Figure 2.1	Spectres de photoluminescence de trois échantillons de GaP ayant des concentrations d'azote de (a) 10^{16} cm^{-3} , (b) 10^{18} cm^{-3} et (c) 10^{19} cm^{-3}	16
Figure 2.2	Spectres de photoluminescence de deux échantillons de GaAs. Le spectre du haut présente l'émission liée à des impuretés d'azote introduites lors de la croissance en utilisant de l'ammoniac. Le spectre du bas provient d'un échantillon n'ayant pas été dopé à l'azote.	17
Figure 2.3	Énergies d'émission des différentes paires d'azote, notées NN_i , en fonction de la pression hydrostatique appliquée sur l'échantillon. L'énergie d'émission d'excitons liés à des donneurs (Dr) est également indiquée.	19
Figure 2.4	Énergie des différents niveaux de paires d'azote par rapport à l'énergie du niveau de l'azote unique dans le GaP et le GaAs. Deux niveaux seulement sont observés dans la bande interdite du GaAs.	20
Figure 2.5	Paire d'azote de symétrie D_{2d} (a) dans le plan de l'échantillon et (b) hors plan. Les axes x, y et z sont relatifs à la paire. L'axe z est choisi selon la paire et les axes x et y selon les axes de symétrie C_2 . Les axes x', y' et z' sont les axes du laboratoire. La projection des axes x, y et z sur le plan de l'échantillon est montrée en rouge pour les deux configurations.	25

Figure 2.6	Paire d'azote de symétrie C_{3v} . Les axes x , y et z sont respectivement parallèles aux directions $[1\ 1\ \bar{2}]$, $[\bar{1}\ 1\ 0]$ et $[1\ 1\ 1]$. Les projections des axes x et z sur le plan de l'échantillon sont dans la direction opposée à y' alors que y coïncide avec x'	26
Figure 2.7	Paire d'azote de symétrie C_{2v} (a) dans le plan de l'échantillon et (b) hors plan. Les axes x , y et z sont relatifs à la paire. L'axe z est l'axe C_2 et l'axe y est choisi selon la paire. Les axes x' , y' et z' sont les axes du laboratoire. Les projections des axes x , y et z sur le plan de l'échantillon sont montrées pour les deux configurations.	28
Figure 2.8	Spectres de PL résolus en polarisation linéaire montrant la structure fine d'une paire d'azote de configuration NN_1 et de symétrie C_{2v} (a) dans le plan de l'échantillon (b) et hors plan. Les transitions observées sont indiquées par des flèches.	30
Figure 2.9	Spectre de PL résolu en polarisation linéaire montrant la structure fine du centre isoélectronique NN_2 dans le GaAs, attribué à une paire d'azote de symétrie C_{2v}	30
Figure 2.10	Structure fine d'un système où les trous légers sont à beaucoup plus haute énergie que les trous lourds. Deux états sont brillants et séparés par une énergie δ_1 et deux états sont noirs et séparés par une énergie δ_2 . Les états noirs et brillants sont séparés par δ_0	33
Figure 2.11	Spectre de PL d'une paire d'azote C_{2v} dans le GaAs en fonction du champ magnétique. En (a), le spectre est détecté à 90° et en (b) à 0° de polarisation linéaire. Les traits blancs pleins (tiretés) indiquent les états brillants calculés et émettant dans la polarisation donnée (croisée). Les traits tiretés noirs indiquent la position calculée des états noirs.	35
Figure 2.12	(a) Spectre de PL en fonction de la polarisation d'une paire de tellure dans le ZnSe pour lequel l'émission de l'exciton (X), du biexciton (XX) et de l'exciton chargé (X^*) sont visibles. (b) Évolution temporelle du spectre montrant une dérive spectrale commune aux trois transitions. (c) Intensité de PL intégrée pour chaque configuration de charge en fonction de la puissance. Les intensités croissent selon une loi de puissance ayant les exposants k donnés	39

Figure 2.13	Schématisation des niveaux d'énergie impliqués lors d'une cascade biexcitonique en symétrie C_{2v} , montrant que les polarisations des deux photons émis sont parallèles et que les polarisations des transitions provenant du biexciton sont inversées par rapport aux transitions provenant de l'exciton.	40
Figure 3.1	Trajectoires sur la sphère de Bloch d'un système à deux niveaux lorsque $\Delta/\Omega = -0.05$ en rouge, $\Delta/\Omega = 0$ en noir et $\Delta/\Omega = 0.05$ en bleu. Les trajectoires sont présentées dans un référentiel tournant à la fréquence ω_L	45
Figure 3.2	Représentation sur la sphère de Bloch de l'effet d'une impulsion (a) $\pi/2$, (b) π et (c) 2π sur un système à deux niveaux	47
Figure 3.3	(a) Séquence d'impulsions lors d'une expérience d'interférence de Ramsey. Deux impulsions $\pi/2$ sont séparées par un délai τ . (b) Représentation sur la sphère de Bloch de l'évolution de l'état suite aux deux impulsions. La première impulsion crée une rotation de $\pi/2$ autour de l'axe R_1 (flèche verte). La seconde impulsion provoque une rotation de $\pi/2$ autour de l'axe R_2 (flèche orange). Adaptée avec permission de [101]	49
Figure 3.4	Schéma de l'échantillon étudié. Un puits quantique est créé par la présence de deux couches de $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$. La couche d'intérêt de GaAs:N a une largeur de 25 nm et est comprise entre deux couches tampon de GaAs de 5 nm d'épaisseur.	50
Figure 3.5	Photoluminescence résolue en polarisation d'une paire C_{2v} ne présentant que deux transitions, $ X\rangle$ et $ Y\rangle$. Adaptée avec permission de [101].	51
Figure 3.6	Méthode de lecture du qubit. Un laser résonant crée un état quantique en superposition entre $ 0\rangle$ et $ X\rangle$. L'état est lu en mesurant la fluorescence de l'état $ Y\rangle$, qui provient d'un transfert de l'exciton de $ X\rangle$ à $ Y\rangle$ à un taux γ_{xy} . Le temps de vie de la fluorescence de l'état $ Y\rangle$ est τ_y . Deux autres états, un exciton noir et un état polarisé en z , qui ne sont pas accessibles en PL, sont représentés. Adaptée avec permission de [101]	52
Figure 3.7	Méthode de discrimination temporelle du signal de fluorescence. (a) Représentation schématique de l'intensité de lumière en fonction du temps. En ouvrant le détecteur après l'impulsion laser, il est possible de rejeter celle-ci. (b) Réponse de la photodiode avalanche à une impulsion laser. La pleine largeur à mi-hauteur est de 60 ps et la queue de la réponse a un temps caractéristique inférieur à 60 ps.	53

Figure 3.8	Montage expérimental servant à mesurer les rotations de Rabi et les franges de Ramsey. CCD : <i>Charge Coupled Device</i> , PDA : photodiode avalanche	54
Figure 3.9	Montage électrique permettant le déclenchement de la photodiode avalanche après le passage de l'impulsion laser.	55
Figure 3.10	(a) PL résolue en polarisation de la paire d'azote excitée en résonance. L'excitation se fait à 90° et la détection à 0° . (b) Intensité de fluorescence en résonance en fonction du temps lorsqu'une paire d'azote est excitée avec une impulsion de 1 ps. Les trois courbes sont obtenues pour trois puissances moyennes. Les courbes en traits pleins sont ajustées à l'aide d'une exponentielle ayant un temps caractéristique $\tau_y = 3.9$ ns. Adaptée avec permission de [101].	56
Figure 3.11	Intensité simulée de la fluorescence du niveau $ Y\rangle$ en fonction du temps. Un temps de montée de 0.8 ns et un temps de vie de 3.1 ns sont calculés. La fenêtre d'acquisition est indiquée.	59
Figure 3.12	(a) Intensité intégrée de la fluorescence du niveau $ Y\rangle$ en fonction de la racine carrée de la puissance d'excitation. Les traits pleins et pointillés sont des ajustements considérant respectivement aucun déphasage et un paramètre de déphasage $K_2 = 4$ fs. (b) Rotations sur la sphère de Bloch de l'état quantique pour trois puissances différentes. Adaptée avec permission de [101]	60
Figure 3.13	Rotations de Rabi mesurées sur deux autres paires d'azote. La PL résolue en polarisation est présentée en (a) et (b). La transition à haute énergie est excitée en (a) ; l'excitation en (b) est à basse énergie. Les rotations de Rabi ainsi que les moments dipolaires sont donnés en (c) et (d). Adaptée avec permission de [101].	62
Figure 3.14	Intensité de fluorescence en fonction du délai fin τ_f entre deux impulsions $\pi/2$. Des franges de Ramsey sont clairement observables. Adaptée avec permission de [101].	64
Figure 3.15	Amplitude des franges de Ramsey en fonction du délai grossier τ_c . La fonction d'auto-corrélation du laser est également présentée. Adaptée avec permission de [101].	65
Figure 3.16	Ajustements de la décroissance de l'amplitude des franges de Ramsey avec un modèle gaussien (trait plein) et exponentiel (trait tireté). Des temps de cohérence de 72 et 115 ps sont respectivement obtenus. . . .	66

Figure 3.17	Intensité de PL à la sortie d'un interféromètre de Fabry-Pérot. L'échelle d'énergie est calibrée en utilisant un intervalle spectral libre de $100 \mu\text{eV}$ donné par le fabricant. Le trait plein est obtenu en convoluant une lorentzienne ayant une demie largeur à mi-hauteur de $9 \mu\text{eV}$ avec une fonction d'Airy.	68
Figure 4.1	Niveaux d'énergie d'un système à deux niveaux sans couplage et lorsque les niveaux sont couplés par un laser résonant. Dans le cas où le laser est parfaitement résonant ($\Delta = 0$), les états habillés d'indice n sont séparés par une énergie $\hbar\Omega$. Dans ce cas, quatre transitions optiques sont possibles, deux à la fréquence $\hbar\omega_L$ et deux autres aux fréquences $\hbar\omega_L \pm \hbar\Omega$	71
Figure 4.2	Représentation schématique du doublet d'Autler-Townes. Lorsqu'un laser est résonant avec la transition $ 0\rangle$ à $ X_2\rangle$, les deux états sont habillés. Le spectre d'émission d'un état témoin, par exemple $ Y_1\rangle$, est alors formé d'un doublet.	72
Figure 4.3	Montage permettant de mesurer la fluorescence en résonance. Un laser continu à 780 nm permet de localiser les paires d'azote. Un laser Ti-Sapphire est placé en résonance. L'échantillon est maintenu à 4 K et est excité avec de la lumière polarisée linéairement. Une lame demi-onde permet d'ajuster la polarisation d'excitation. La lumière est détectée en polarisation linéaire croisée. Un réseau est placé devant un spectromètre afin de supprimer la lumière parasite. Le signal est mesuré par un capteur CCD.	73
Figure 4.4	(a) Spectre de PL résolu en fonction de la polarisation linéaire de la paire d'azote de symétrie C_{2v} étudiée, obtenu à l'aide d'une excitation non-résonante à 780 nm. (b) Schématisation de la détection : la transition $ X_2\rangle$ est excitée en résonance et la fluorescence est mesurée via $ Y_1\rangle$, en polarisation croisée.	74
Figure 4.5	(a) Spectres de PL hors résonance détectés à 45° et 135° . (b) Lorsque le laser d'excitation est résonant avec $ Y_2\rangle$, la raie $ X_1\rangle$ est observée.	75

Figure 4.6	Effets d'un balayage de l'excitation sur la fluorescence en résonance. La puissance d'excitation est de 800 nW. (a) Intensité de fluorescence de la transition $ Y_1\rangle$ lorsque l'énergie du laser est balayée autour de la transition $ X_2\rangle$. L'intensité est bien décrite par une lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur est de $70 \mu\text{eV}$. (b) Énergie d'émission de $ Y_1\rangle$ en fonction de l'énergie d'excitation. Une variation de $30 \mu\text{eV}$ de l'énergie d'émission est observable lorsque le laser balaie l'état $ X_2\rangle$. Le trait plein est calculé. (c) Spectres de PL pour une excitation à 1509.92 meV et 1509.96 meV. Les énergies d'émission extraites ces deux spectres sont identifiées en (b) par des traits tiretés. Une variation de l'énergie d'émission de $30 \mu\text{eV}$ est résolue. La largeur à mi-hauteur des raies d'émission est de $60 \mu\text{eV}$	76
Figure 4.7	Simulation du spectre d'émission de l'état $ Y_1\rangle$ lorsque $ X_2\rangle$ est excité avec un décalage spectral Δ (données en posant $\hbar = 1$). Les énergies sont relatives à l'énergie de $ Y_1\rangle$ lorsque l'état du vide $ 0\rangle$ n'est pas habillé ($E_{ Y_1\rangle}$). Les largeurs de raie sont de $\Delta E = 20 \mu\text{eV}$ en (a) et de $\Delta E = 60 \mu\text{eV}$ en (b). La fréquence de Rabi utilisée est de $\Omega = 45/\hbar \mu\text{eV}$	78
Figure 4.8	(a) Spectres de fluorescence normalisés de la transition $ X_2\rangle$ pour différentes puissances d'excitation lorsque $ Y_1\rangle$ est excitée en résonance. Les cercles sont les données expérimentales et les traits continus sont calculés. Les traits pointillés permettent de visualiser l'élargissement de la raie d'émission à haute puissance. (b) Décalage spectral en fonction de la puissance d'excitation, montrant que l'énergie du laser fluctue d'une mesure à l'autre. L'axe des ordonnées est en unités de $\hbar = 1$	79
Figure 5.1	(a) Système Λ pour lequel deux niveaux sont couplés indirectement par un état excité (sur le schéma, $\hbar = 1$). (b) Système permettant une transition de recyclage pour lequel un seul des deux niveaux de basse énergie est couplé à l'état excité $ 2\rangle$	83
Figure 5.2	Règles de sélection pour un exciton chargé trous lourds en configuration (a) de Faraday et (b) de Voigt. Les polarisations circulaires sont dans le plan xy	86

Figure 5.3	(a) Règles de sélection pour un exciton chargé à champ nul. Deux transitions non-polarisées sont possibles entre les 2 niveaux initiaux doublement dégénérés, séparés par une énergie δ_h , et l'état final doublement dégénéré. (b) Règles de sélection lorsque l'interaction des trous avec le champ magnétique domine l'interaction avec le champ cristallin. Deux transitions sont polarisées linéairement dans la direction du champ (π), quatre transitions sont polarisées circulairement dans le plan perpendiculaire au champ (σ^+ et σ^-) et deux transitions sont interdites.	90
Figure 5.4	Évolution en énergie des quatre états de trous en fonction du champ magnétique. La transition de recyclage présentant le rapport d'embranchement le plus élevé implique l'état trou lourd à haut champ magnétique provenant d'un état de prédominance trou lourd à champ nul. Cet état est illustré par un trait pointillé.	93
Figure 5.5	Configuration de Voigt permettant l'initialisation, le contrôle et la lecture du spin. Le champ magnétique est appliqué selon x , l'axe perpendiculaire au plan miroir en symétrie C_s et l'axe optique est selon z	95
Figure 5.6	(a) Pour initialiser le spin, la transition $ \uparrow\rangle_x \rightarrow -1/2\rangle_x$ est excitée par un laser continu polarisé linéairement selon y . L'émission spontanée, dont le taux est de Γ , initialise éventuellement le système dans l'état $ \downarrow\rangle_x$ (b) Le calcul théorique des populations démontre que le spin est initialisé en 5 ns avec une fidélité supérieure à 99.5%. Le trait plein représente la population ρ_{00} de l'état $ 0\rangle$, le trait pointillé est la population ρ_{11} de l'état $ 1\rangle$, et le trait tireté est associée à ρ_{22} , la population de $ 2\rangle$. La fidélité de l'initialisation est donnée par ρ_{00}	96
Figure 5.7	Les états trous légers de l'exciton chargé offrent un système double- Λ permettant le contrôle cohérent du spin électronique à l'aide d'un laser de rotation polarisé circulairement. δ_e représente le décalage entre les niveaux électroniques et les Δ_i sont les décalages spectraux entre le laser de rotation et les états de l'exciton chargé.	98
Figure 5.8	Pour réaliser la lecture du spin électronique, une transition de recyclage impliquant un état trou lourd est excitée par un laser polarisé linéairement selon y	101
Figure 6.1	Le spectre de macro-PL du GaAs dopé à l'azote montre une transition à 1505.1 meV qui est attribuée à une paire d'azote de symétrie C_s	104

Figure 6.2	Deux configurations de paires d'azote donnant des structures fines distinctes en symétrie C_s . En (a) la paire est orientée selon la direction $[1\ 1\ 2]$ et l'axe x , perpendiculaire au plan miroir, est orienté selon $[\bar{1}\ 1\ 0]$. En (b), la paire est selon $[2\ 1\ 1]$ et x selon $[0\ \bar{1}\ 1]$. Les projections des axes x , y et z sur le plan de l'échantillon sont données dans les deux cas. Les axes x' , y' et z' sont les axes de référence du laboratoire.	106
Figure 6.3	Procédure utilisée pour trouver les paramètres d'échange et de champ cristallin.	109
Figure 6.4	(a) Spectre de PL d'une paire d'azote de symétrie C_s en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Les deux spectres montrés au-dessus de la carte de couleur sont détectés à des angles de 0° ($\pi_{x'}$) et 90° ($\pi_{y'}$). Les rectangles sont les énergies d'émission calculées et leur hauteur correspond à la force d'oscillateur de chaque transition. Deux transitions, pour lesquelles les forces d'oscillateurs sont trop faibles pour être illustrées, sont indiquées par des flèches. (b) Intensités intégrées et normalisées des trois transitions à basse énergie en fonction de l'angle de polarisation, présentées sur un diagramme polaire. Les traits pleins sont les intensités calculées. (c) Intensités des trois transitions à haute énergie. Les transitions sont notées selon leur polarisation (x_i ou yz_i) et les indices i augmentent avec l'énergie.	111
Figure 6.5	Spectre de PL en fonction de la polarisation d'une paire d'azote de symétrie C_s dont l'axe x est hors plan. Six transitions sont observées sur les deux spectres présentés au-dessus des données en polarisation, détectés à 60° et 135° . Les rectangles représentent les énergies calculées et leur hauteur les forces d'oscillateur. Les deux flèches indiquent la position de deux états noirs.	113
Figure 6.6	Intensité intégrée des transitions en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Les courbes (a)-(f) correspondent aux transitions d'énergie croissante. Les transitions en noir (rouge) sont associées à la représentation Γ_2 (Γ_1)	114
Figure 6.7	Schéma des niveaux d'énergie de la paire orientée en (a) $[1\ 1\ 2]$ et en (b) $[2\ 1\ 1]$. Les représentations de chaque état sont indiquées. Les états à basse énergie sont composés d'une plus forte proportion de trous lourds en (a) et d'une plus forte proportion de trous légers en (b).	115

Figure 6.8	Spectres de PL résolu en polarisation (a) et (c) linéaire et (b) et (d) circulaire d'un exciton chargé négativement. Les spectres sont acquis à champ magnétique nul en (a) et (b) et à un champ de -6 T en (c) et (d). À champ nul, deux transitions non-polarisées sont observées. À champ élevée, huit transitions sont observées. Les spectres au-dessus de chaque carte de couleur sont détectés dans les polarisations $\pi_{x'}$, $\pi_{y'}$, σ^+ ou σ^- . Adaptée avec permission de [135].	119
Figure 6.9	Spectre de PL détecté en polarisation linéaire en fonction du champ magnétique appliqué d'un exciton chargé . Les deux raies d'émission à champ nul évoluent en deux quadruplets à champ magnétique élevé. Les flèches indiquent les positions en énergie des raies d'émission. . .	120
Figure 6.10	Configuration du champ magnétique : le champ est appliqué selon l'axe z' se trouve à 35° de l'axe y d'une paire d'azote de symétrie C_s orientée selon $[1\ 1\ 2]$	122
Figure 6.11	(a) Énergies des huit transitions de l'exciton chargé en fonction du champ magnétique. Les cercles pleins (vides) représentent des états liant majoritairement des trous lourds (légers). Les transitions émettant préférentiellement en polarisation circulaire droite (gauche) sont représentées en rouge (noir). Les énergies calculées sont représentées par des traits pleins. Les transitions sont numérotées en fonction de leur énergie à -6 T (b) Intensités intégrées en fonction de l'angle de polarisation linéaire (rouge) et circulaire (bleu) des huit transitions à -6 T. Les traits rouges et bleus sont les polarisations calculées respectivement dans les bases linéaires et circulaires. Adaptée avec permission de [135].	123
Figure 6.12	(a) Configuration permettant d'implémenter l'initialisation, le contrôle et la lecture d'un spin. Un champ magnétique est appliqué selon l'axe z et l'axe x est l'axe optique du système. (b) Énergies propres et vecteurs propres des excitons chargés et des électrons lorsqu'un champ de 8 T est appliqué en z . L'initialisation et la lecture du spin peuvent être réalisées en excitant les transitions indiquées à l'aide de lasers polarisés linéairement selon y . Adaptée avec permission de [135].	127
Figure A.1	Schéma d'un interféromètre stabilisé activement.	143
Figure A.2	Branchements de l'amplificateur à détection synchrone HF2LI permettant de stabiliser l'interféromètre. Les entrées et sorties de l'amplificateur utilisées sont indiquées en bleu.	144

Figure A.3	Puissance du laser HeNe à la sortie de l'interféromètre en fonction du temps. Durant les 11 premières minutes, l'interféromètre est stabilisé à différentes phase par bond de 20° . Après 11 minutes, la stabilisation est arrêtée, montrant des fluctuations quatre fois plus importantes de la phase.	146
Figure B.1	Les seuls éléments de symétrie d'un objet C_s sont l'identité E et le plan miroir (plan yz).	147

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

Centre NV	Centre composé d'un atome d'azote et d'une lacune
HTL	Modèle de Thomas, Hopfield et Lynch
PL	Photoluminescence
PLE	Excitation de la photoluminescence
LO	Phonon longitudinal optique
TO	Phonon transverse optique
NN_i	Configuration de paire d'azote en i ^e plus proche voisin, selon le modèle HTL
FE	Excitons libres (<i>Free Excitons</i>)
FB	Émission d'un état libre à lié (<i>Free to Bound</i>)
DAP	Paire donneur accepteur (<i>Donor Acceptor Pair</i>)
X	Exciton
XX	Biexciton
X*	Exciton chargé
CCD	Charge Coupled Device
PDA	Photodiode avalanche

LISTE DES SYMBOLES

Constantes universelles

\hbar	Constante de Planck
c	Vitesse de la lumière
ε_0	Permittivité du vide
k_B	Constante de Boltzmann
a_0	Rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène

Symboles relatifs aux fonctions d'onde dans un semi-conducteur

a_B	Rayon de Bohr dans un semi-conducteur
ε_R	Permittivité électrique relative
m_h^*	Masse effective d'un trou

Ψ_e	Fonction d'onde totale de l'électron
Ψ_h	Fonction d'onde totale du trou
$F_{e,h}$	Fonctions d'onde enveloppe de l'électron et du trou
$u_{e,h}$	Fonctions d'onde atomiques de l'électron et du trou

Symboles relatifs à la modélisation de la structure fine excitonique

S	Spin total de l'électron
S_z	Projection du spin électronique en z
L	Moment cinétique orbital
L_z	Projection du moment cinétique orbital en z
J	Moment cinétique total
J_z	Projection du moment cinétique total en z
α_e	État de spin électronique pour lequel $S_z = 1/2$
α_h	État de spin du trou pour lequel $S_z = 1/2$
β_e	État de spin électronique pour lequel $S_z = -1/2$
β_h	État de spin du trou pour lequel $S_z = -1/2$
$\phi_i, i = 1, 2, 3, 4$	Fonctions de base des trous
$\psi_i, i = 1...8$	Fonctions de base excitoniques
ψ_0	État fondamental du cristal
Y_i^j	Harmoniques sphériques
$M_{i,0}$	Élément de matrice de l'interaction dipolaire
Γ_i	Représentations selon la théorie des groupes
σ_x, σ_y et σ_z	Matrices de Pauli
J_x, J_y et J_z	Opérateurs pour un spin 3/2
H_{CF}	Hamiltonien de champ cristallin
v_i	Paramètres de champ cristallin
v_{yz}	Paramètre de champ cristallin supplémentaire en symétrie C_s
H_{EX}	Hamiltonien d'échange
a_i	Paramètres d'échange
δ_0, δ_1 et δ_2	Séparations en énergie dans un système où seuls les trous lourds sont considérés
H_{Be}, H_{Bh}	Hamiltonien d'un électron ou d'un trou sous champ magnétique
μ_B	Magnéton de Bohr
g_i	Facteurs g de l'électron

$\gamma_e, \gamma_h, \gamma_X$ et γ_{X^*}	Décalages diamagnétiques de l'électron, du trou, de l'exciton et de l'exciton chargé
B	Champ magnétique
K et L	Paramètres de Luttinger sous champ magnétique

Symboles relatifs aux mesures de photoluminescence

I	Intensité d'émission
k_X, k_{XX}, k_{X^*}	Exposants caractéristiques décrivant l'intensité d'émission d'un exciton, biexciton et exciton chargé en fonction de la puissance d'excitation
P	Puissance d'excitation

Symboles relatifs au contrôle cohérent d'un système à deux niveaux

$ \Psi\rangle$	Fonction d'onde du système à deux niveaux
$ \Psi_I\rangle$	Fonction d'onde dans la représentation d'interaction
$ 0\rangle$	État fondamental
$ X\rangle$	État excité d'un système excitonique à deux niveaux
c_0 et c_X	Coefficients de la fonction d'onde d'un système à deux niveaux
\vec{d}	Opérateur moment dipolaire électrique
$\vec{\mu}$	Moment dipolaire électrique
\vec{E}	Champ électrique
\vec{E}_0	Amplitude du champ électrique
$\Omega, \tilde{\Omega}$	Fréquences de Rabi
ω_L	Fréquence du laser
$\hbar\omega_0$	Énergie de l'état excité d'un système à deux niveaux
$\Delta = \omega_0 - \omega_L$	Décalage spectral du laser
ω_r	Fréquence de Rabi généralisée
U	Transformation unitaire
H_S	Hamiltonien du système dans la représentation de Schrödinger
H_I	Hamiltonien dans la représentation d'interaction
$\hat{\rho}$	Opérateur densité
\mathcal{D}	Dissipateur d'une système quantique
T_1	Temps de vie des populations
T_2^*	Temps de cohérence
τ_{corr}	Temps de corrélation de l'environnement d'un système quantique

Θ	Aire d'une impulsion
τ_p	Durée d'une impulsion
\bar{P}	Puissance moyenne d'un laser pulsé
τ_R	Temps séparant deux impulsions laser
τ	Délai entre deux impulsions
τ_f	Délai fin entre deux impulsions
τ_c	Délai grossier entre deux impulsions
S	Aire du faisceau laser sur l'échantillon
n	Indice de réfraction de l'échantillon
ΔI	Amplitude des franges de Ramsey

Symboles relatifs à la dynamique des excitons

$ X\rangle$	État excitonique polarisé selon x
$ Y\rangle$	État excitonique polarisé selon y
$ Z\rangle$	État excitonique polarisé selon z
$ D\rangle$	État excitonique noir
τ_y	Temps de vie de la fluorescence de l'état $ Y\rangle$
γ_{xy}	Taux de transfert entre les états $ X\rangle$ et $ Y\rangle$
H_{hf}	Hamiltonien d'interaction hyperfine
\mathbf{I}	Opérateur de spin nucléaire
A	Constante d'interaction hyperfine
N_B	Nombre de phonons
ΔE_{ij}	Séparation en énergie entre les niveaux $ i\rangle$ et $ j\rangle$

Symboles relatifs à la modélisation du déphasage induit par l'excitation

ρ_{00} et ρ_{XX}	Éléments de matrice diagonaux de la matrice densité
ρ_{0X} et ρ_{X0}	Éléments de matrice hors-diagonaux de la matrice densité
K_2	Constante caractéristique du déphasage induit par l'excitation
ρ_v	Masse volumique du GaAs
D_X	Potentiel de déformation d'un exciton
T	Température de l'échantillon

Symboles relatifs aux états excitoniques habillés

$ \psi_+, n\rangle$ et $ \psi_-, n\rangle$	États excitoniques habillés
$ 0, n+1\rangle$	État habillé à $n+1$ photons
$ X, n\rangle$	État habillé à un exciton et n photons
$E_{n,\pm}$	Énergies des états excitoniques habillés
θ	Angle caractérisant le mélange des états habillés
$ X_1\rangle, X_2\rangle, Y_1\rangle$ et $ Y_2\rangle$	États excitoniques brillants d'une paire d'azote dans le plan en symétrie C_{2v}
ΔE	Largeur à mi-hauteur des raies d'émission

Symboles relatifs au contrôle cohérent d'un spin via l'exciton chargé

$ 0\rangle, 1\rangle$ et $ 2\rangle$	Trois états d'un système Λ
δ_e	Écart en énergie entre deux spins électroniques
$\hbar\omega_e$	Énergie de l'état excité d'un système Λ
Ω_0 et Ω_1	Fréquence de Rabi des deux transitions d'un système Λ
ω_0 et ω_1	Fréquences des lasers couplant les niveaux d'un système Λ
Δ_0 et Δ_1	Décalages spectraux dans un système Λ
Ω_{eff}	Fréquence de Rabi effective sous l'élimination adiabatique
$ \uparrow\rangle$ et $ \downarrow\rangle$	États de spins électroniques
$ \uparrow\rangle$ et $ \downarrow\rangle$	États de spins du trou
δ_{1x}, δ_{2x} et δ_{3x}	Éléments de matrice du champ cristallin dans la base J_x
δ_{1z}, δ_{2z} et δ_{3z}	Éléments de matrice du champ cristallin dans la base J_z
δ_4	Élément de matrice du champ cristallin en symétrie C_s .
δ_h	Séparation entre les états de prédominance trous lourds et trous légers à champ magnétique nul
α_x et β_x	Paramètres décrivant l'interaction d'un trou avec un champ magnétique dans la base J_x
α_z et β_z	Paramètres décrivant l'interaction d'un trou avec un champ magnétique dans la base J_z
η_x	Rapport d'embranchement d'une transition de recyclage pour un champ magnétique appliqué selon x
η_z	Rapport d'embranchement d'une transition de recyclage pour un champ magnétique appliqué selon z
ρ_{ij}	Éléments de la matrice densité
Ω_{ij}	Fréquences de Rabi des six transitions permises de l'exciton chargé
Δ_i	Décalages spectraux pour l'exciton chargé

δ_{S1} et δ_{S2} Variations d'énergies provenant de l'effet Stark AC

Symboles relatifs à la modélisation d'une paire de symétrie C_s

χ_E^2	Somme du carré des erreurs entre les énergies calculées et théoriques
χ_{Pol}^2	Somme du carré des erreurs entre les polarisations calculées et théoriques
χ_{Tot}^2	Erreur totale sur la modélisation des excitons et excitons chargés
x_i et yz_j	Identification des transitions d'une paire de symétrie C_s , où les indices i et j augmentent avec l'énergie des transitions
$ T_i\rangle$	États propres des excitons chargés

LISTE DES ANNEXES

Annexe A	Interféromètre stabilisé en phase	143
Annexe B	Dérivation de l'hamiltonien C_s par la méthode des invariants	147

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Notre capacité à connecter des ordinateurs à distance et à partager de l'information via un réseau a certainement révolutionné les technologies de l'information. L'internet est aujourd'hui une ressource indispensable et accessible de multiples façons, presque en tout temps. Une autre révolution dans les technologies de l'information pourrait provenir de l'exploitation des règles de la mécanique quantique pour développer de nouvelles technologies quantiques. En effet, les ordinateurs quantiques ont le potentiel de résoudre des problèmes, tels que la factorisation de nombres [1] et la recherche dans les bases de données [2], de façon beaucoup plus efficace que les ordinateurs classiques. De plus, les communications quantiques permettront l'échange d'information de façon fondamentalement sécuritaire [3].

Ainsi, au cours des dernières années, l'idée d'établir des réseaux quantiques [4], ou encore un internet quantique [5, 6], a émergé et a stimulé des recherches dans les domaines de la physique du solide, de l'optique quantique et de la théorie de l'information. Un réseau quantique serait similaire à un réseau classique, c'est-à-dire que des processeurs distribués dans l'espace seraient connectés par des canaux de communication. Toutefois, l'information échangée serait de nature quantique et circulerait par des canaux quantiques. Mais quels seraient les avantages de ces réseaux ?

D'une part, ceux-ci permettraient d'implémenter des communications quantiques à grande échelle et surtout sur de grandes distances. Le principal défi des communications quantiques est la réalisation d'un échange de clés quantiques (*quantum key distribution*) [3, 7]. Cet échange peut être réalisé de deux façons. D'abord, un protocole élémentaire a été élaboré en 1984 et nommé BB84 [3] permettant l'échange sécuritaire d'une clé entre deux parties via des photons uniques polarisés dans deux bases complémentaires. La mesure quantique et l'impossibilité de cloner un état quantique [8] assurent la sécurité absolue de ce protocole. Toutefois, celui-ci ne peut être utilisé sur de longues distances (plusieurs centaines de kilomètres), car il n'est pas adapté à des pertes dans le canal de communication [9], qui est généralement une fibre optique. Or, contrairement à un signal classique, un signal quantique ne peut pas être amplifié puisqu'il est impossible de cloner un état quantique.

Un deuxième protocole pour l'échange de clés quantiques repose plutôt sur la génération d'états intriqués partagés entre deux parties [7, 10]. Celui-ci permet la distribution de clés quantiques sur de grandes distances s'il est possible de réaliser l'intrication sur de telles distances. Pour ce faire, il est nécessaire de contourner les pertes inhérentes aux canaux de communication, c'est-à-dire les pertes dans les fibres optiques, en implémentant un répéteur

quantique [11]. Un répéteur quantique utilise la permutation de l'intrication (*entanglement swapping*) [12] pour propager l'intrication sur de grandes distances ; il agit ainsi comme un relais. Un réseau de communications quantiques serait donc composés de plusieurs nœuds formés de répéteurs quantiques et connectés via des fibres optiques.

Notons par ailleurs que la téléportation est un autre processus pouvant être utilisé pour communiquer des états quantiques à distance [13]. Ce procédé nécessite également des répéteurs quantiques pour être réalisé sur de grandes distances.

D'autre part, les réseaux quantiques pourraient s'avérer essentiels à la réalisation de calculs quantiques d'une grande complexité. En effet, certains systèmes physiques permettent de fabriquer des processeurs comprenant quelques bits d'information quantique (des qubits) de façon efficace, mais permettent difficilement leur mise à l'échelle, c'est-à-dire l'ajout de nombreux qubits. Or, en connectant quelques-uns de ces processeurs en un réseau, il serait possible de créer un super-ordinateur utilisant le calcul quantique distribué (*distributed quantum computation*) [14]. La connexion de k processeurs (ou nœuds) comprenant n qubits via un réseau quantique définit un espace de 2^{kn} états pour le calcul ; la connexion de ces mêmes qubits via un réseau classique ne permet que $k2^n$ états [6]. Il y a donc un intérêt manifeste à connecter des processeurs via un réseau quantique.

La figure 1.1 illustre les deux types de réseaux quantiques proposés [15]. En (a), un réseau de communications quantiques permet de partager un état intriqué entre deux parties, illustrées en vert. Les répéteurs quantiques, en noir, permettent de propager cette intrication. Les canaux de communication sont illustrés par des traits ondulés. En (b), un réseau de calcul quantique est illustré. Chaque processeur est connecté aux processeurs adjacents pour réaliser le calcul quantique distribué.

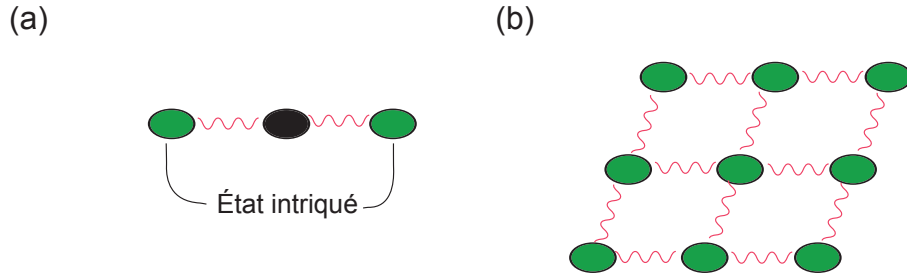


Figure 1.1 (a) Réseau de communications quantiques, permettant de générer un état intriqué entre les deux nœuds en vert. Chaque nœud intermédiaire, en noir, est un répéteur quantique. Les canaux de communication sont illustrés par des traits ondulés. (b) Réseau de calcul quantique. La possibilité de lier des processeurs via des canaux quantiques augmente considérablement les capacités d'un ordinateur quantique distribué.

Des interfaces optiques entre des qubits stationnaires, c'est-à-dire des qubits localisés sur les nœuds du réseau, et les qubits volants, les photons, connectant les nœuds, seront essentielles à la réalisation de réseaux quantiques [6, 15, 16]. Ces interfaces devront permettre le transfert de l'état d'un qubit stationnaire vers un photon et vice-versa ; les qubits stationnaires utilisés pour ces interfaces doivent donc être contrôlables optiquement. Dans les prochaines sections, nous allons d'abord établir les différents critères nécessaires à la réalisation d'interfaces optiques, puis nous allons comparer les différents systèmes proposés à cet effet. L'objectif de cette thèse sera de démontrer que les centres isoélectroniques s'avèrent une alternative intéressante aux systèmes actuellement proposés pour la réalisation d'interfaces optiques en vue de construire des réseaux quantiques.

Notons que bien que les applications décrites ici soient largement suffisantes pour justifier la recherche sur les réseaux quantiques, toutes leurs possibilités n'ont probablement pas encore été envisagées. De nombreuses nouvelles technologies employant ces réseaux seront certainement imaginées lorsque ceux-ci seront disponibles.

1.1 Bits quantiques

Afin de bien comprendre quelles sont les propriétés utiles à la réalisation d'interfaces optiques entre les qubits stationnaires et volants, décrivons d'abord de façon générale les qubits.

1.1.1 Définition

En plus de l'intrication, la principale différence entre les technologies de l'information classique et quantique réside dans la façon d'encoder un bit d'information. Comme son analogue classique, le qubit est formé de deux états, $|0\rangle$ ou $|1\rangle$. Toutefois, la puissance des technologies de l'information quantique provient, en partie du moins, du fait que le qubit peut se trouver dans n'importe quelle superposition de ces deux états. L'état d'un qubit s'écrit donc de la façon suivante

$$|\psi\rangle = \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) |0\rangle + e^{i\phi} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) |1\rangle, \quad (1.1)$$

où $0 \leq \theta \leq \pi$ et $0 \leq \phi < 2\pi$. Puisque l'état d'un qubit est donné par deux angles, il est naturel de le représenter sur une sphère, la sphère de Bloch, tel que montré à la figure 1.2. Dépendamment des angles θ et ϕ , un qubit peut se trouver à n'importe quel point sur la surface de la sphère de Bloch.

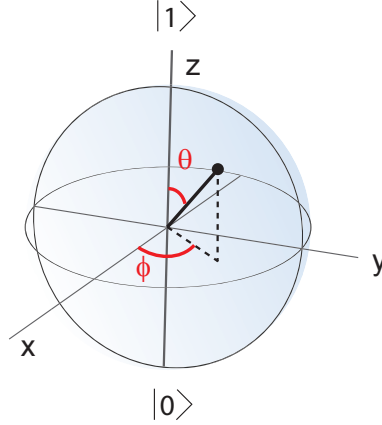


Figure 1.2 Sphère de Bloch. Représentation graphique de l'état d'un système quantique à deux niveaux, où θ représente la population et ϕ la phase relative entre les niveaux.

1.1.2 Critères de DiVincenzo

L'implémentation de qubits dans un système physique s'avère un défi formidable. Une liste de critères devant être satisfaits par un système donné pour pouvoir y implémenter le traitement de l'information quantique a été établie par DiVincenzo [17]. Ceux-ci permettent d'évaluer le potentiel de différents systèmes pour la réalisation de technologies quantiques. Voici une courte description de ces critères :

1. *Le système physique doit présenter un qubit bien caractérisé et pouvoir être mis à l'échelle ;*

Un qubit bien caractérisé signifie que l'hamiltonien décrivant son évolution est connu. De plus, l'interaction d'un qubit avec des champs externes permettant son contrôle et avec d'autres qubits doit être caractérisée. Son interaction avec des états ne faisant pas partie de ses deux états de base doit également être connue et très faible, de sorte que le système puisse être considéré comme un système à deux niveaux. Le critère de mise à l'échelle signifie qu'il doit être possible d'ajouter un grand nombre de qubits au système et de pouvoir les intriquer.

2. *Le système doit pouvoir être initialisé dans un état donné ;*

En d'autres mots, les qubits doivent être placés à un point connu sur la sphère de Bloch.

3. *Le temps de cohérence des qubits doit être beaucoup plus long que le temps d'opération ;*

Le temps de cohérence d'un qubit dans l'état $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ est le temps selon lequel l'évolution des coefficients α et β peut être prédite par l'hamiltonien du système. Le temps d'opération est le temps nécessaire pour modifier l'état du qubit. Le rapport entre le temps de cohérence et le temps d'opération doit être d'au moins 10^4 afin d'im-

plémenter des stratégies de correction d'erreurs qui peuvent survenir lors de l'opération des qubits.

4. *Un ensemble universel de portes logiques doit être disponible ;*

Il a été démontré qu'il est possible de réaliser n'importe quelle porte logique à n qubits à l'aide d'une séquence de portes à un ou deux qubits (voir, par exemple [18]). Ce critère peut donc se résumer à la possibilité de contrôler complètement un qubit, c'est-à-dire de le placer n'importe où sur la sphère de Bloch, et de réaliser des portes logiques à deux qubits. Notons que la fidélité de ces portes logiques doit être élevée afin de minimiser les erreurs.

5. *Les qubits doivent être lisibles.*

La lecture doit être réalisée également avec une grande fidélité. Par exemple, si un qubit est dans l'état $|0\rangle$, la probabilité de lire l'état $|1\rangle$ doit être très faible.

Les cinq critères précédents sont nécessaires pour réaliser un ordinateur quantique. Toutefois, pour construire des réseaux quantiques, deux critères supplémentaires ont été ajoutés par DiVincenzo :

6. *Il doit être possible de convertir un qubit stationnaire en un qubit volant et vice-versa ;*

Un qubit volant agit comme un intermédiaire entre deux qubits stationnaires qui sont séparés par une longue distance. Les photons représentent les qubits volants les plus prometteurs puisqu'ils se propagent à haute vitesse avec un minimum de pertes. La conversion d'un qubit stationnaire en un photon se fait par l'entremise d'interfaces optiques.

7. *Les qubits volants doivent être transmis fidèlement entre deux endroits précis.*

Les répéteurs quantiques permettront la transmission fidèle des qubits volants.

Les critères de DiVincenzo font ressortir un point important : les systèmes qui seront utilisés pour réaliser un ordinateur quantique pourraient s'avérer très différents des systèmes utilisés pour réaliser des interfaces optiques. Par exemple, il est actuellement possible de construire des circuits quantiques à 9 qubits à l'aide de matériaux supraconducteurs [19], mais des interfaces permettant de convertir les qubits stationnaires en qubits volants sont difficilement accessibles dans un tel système. Un autre système prometteur pour la réalisation d'un ordinateur quantique est l'utilisation de spins électroniques dans le silicium purifié isotopiquement [20–22], matériau dans lequel le temps de cohérence électronique peut atteindre plusieurs minutes à température ambiante [23]. Toutefois, il est difficile de convertir un qubit stationnaire en un photon dans ce matériau, notamment à cause des processus Auger [24]. Ainsi, les futures technologies quantiques seront probablement composées de systèmes hybrides, chacun

ayant une fonctionnalité différente [25]. Dans ce contexte, il est pertinent de s'intéresser à de nouveaux candidats pour l'élaboration de ces technologies.

1.1.3 Interfaces optiques - critères importants

En plus des critères de DiVincenzo, deux propriétés importantes seront nécessaires pour intégrer les interfaces optiques aux réseaux quantiques [26].

Fort couplage avec la lumière

Pour pouvoir réaliser l'intrication entre deux qubits dans un réseau quantique sur une échelle de temps utile, il est nécessaire que le couplage entre le qubit stationnaire et la lumière soit grand. Un couplage fort permet en effet l'émission de photons sur des temps caractéristiques très faibles. La force du couplage avec la lumière peut être caractérisée par le moment dipolaire de la transition optique liant le qubit stationnaire au qubit volant : plus le moment dipolaire est élevé, plus le couplage est grand. Par ailleurs, le couplage avec un mode donné du champ électromagnétique peut être amplifié en utilisant des cavités optiques [6, 27].

Grande homogénéité optique

Pour faire interagir deux qubits stationnaires à distance par l'entremise de deux qubits volants, des photons, il est essentiel que les deux photons aient la même longueur d'onde. Il est donc nécessaire que les transitions optiques liant les qubits stationnaires aux qubits volants aient un élargissement inhomogène très faible. Idéalement, la longueur d'onde de cette transition devrait s'approcher des longueurs d'onde des télécommunications ($1.3\ \mu\text{m}$ ou $1.55\ \mu\text{m}$) de façon à minimiser la dispersion ou les pertes dans les fibres optiques.

1.2 Candidats envisagés pour réaliser des interfaces optiques

De nombreux systèmes ont été proposés au cours des années afin de réaliser des interfaces optiques. Bien que les ions piégés aient été largement étudiés à cette fin [6, 15, 27], nous limiterons ici notre discussion aux systèmes à l'état solide. Ces systèmes semblent en effet plus prometteurs pour la mise à l'échelle des réseaux quantiques et pour la réalisation de dispositifs quantiques intégrés [26]. Ils bénéficient en outre de toute l'expertise développée au cours des dernières années dans l'industrie de la micro-électronique.

De tous les systèmes étudiés, les boîtes quantiques auto-assemblées et les centres NV dans le diamant sont certainement les plus avancés pour la réalisation d'interfaces quantiques.

Toutefois, de nouveaux systèmes, tels les centres de couleur dans le SiC, ont récemment émergé afin de pallier certaines difficultés liées aux boîtes quantiques et aux centres NV.

1.2.1 Boîtes quantiques auto-assemblées

Les boîtes quantiques auto-assemblées sont formées lors de la croissance épitaxiale de type Stranski-Krastanov. Les contraintes introduites par la croissance de deux matériaux n'ayant pas le même paramètre de maille résultent en la formation d'îlots. Ceux-ci peuvent confiner des électrons et des trous dans l'espace et forment ainsi des boîtes quantiques. La figure 1.3 montre un exemple de boîte quantique d'InAs dont la croissance est réalisée sur le GaAs, qui est le type de boîte quantique le plus étudié pour le traitement de l'information quantique.

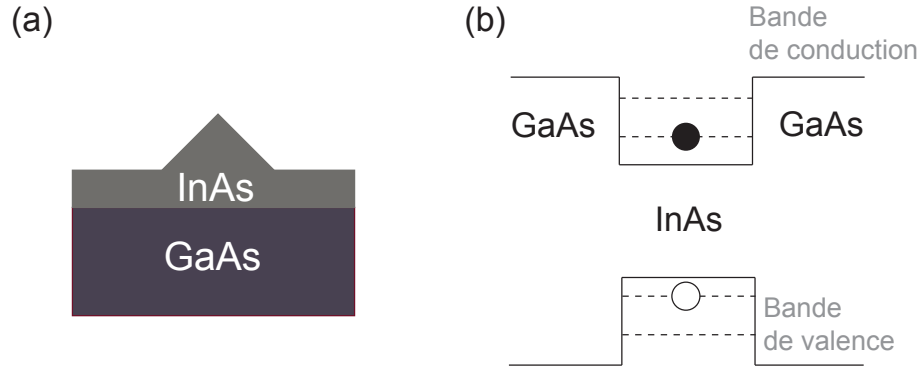


Figure 1.3 (a) La croissance d'InAs sur du GaAs peut générer des îlots formant des boîtes quantiques. (b) Structure de bande de la boîte quantique. À l'intérieur de la boîte, les électrons et les trous sont confinés. La présence d'un électron et d'un trou forme un exciton.

Tel qu'illustré à la figure 1.3 (b), les boîtes quantiques peuvent lier à la fois des électrons de la bande de conduction et des trous de la bande de valence pour former des excitons. D'autres configurations de charge sont également possibles : un seul électron, un seul trou, un exciton chargé composé de deux électrons et d'un trou ou de deux trous et d'un électron, de même que des biexcitons, formés par deux trous et deux électrons, peuvent être liés.

Un qubit stationnaire dans ce système est formé par le spin d'un électron ou d'un trou lié à la boîte quantique. Celui-ci peut être initialisé, contrôlé et lu optiquement en tirant profit des règles de sélection gouvernant les transitions optiques entre le spin et un exciton chargé [28–31]. De plus, l'intrication d'un spin avec un photon [32–34] de même que la téléportation d'un photon vers un spin [35] ont été réalisées dans ce système, démontrant son potentiel pour fabriquer des interfaces quantiques.

Le principal avantage des boîtes quantiques est leur fort moment dipolaire, variant de 10 à 60 D [36–42]. De plus, les méthodes de fabrication de cavités optiques sont développées

dans les semi-conducteurs III-V et ces cavités peuvent augmenter le couplage des spins avec la lumière [43–45]. Toutefois, le grand nombre d’atomes formant les boîtes quantiques représente une difficulté puisqu’il est impossible de fabriquer deux boîtes quantiques identiques. Ce système souffre donc d’un très grand élargissement inhomogène, de l’ordre de 12500 GHz (50 meV) [46]. De plus, le temps de cohérence des spins, de l’ordre de 3 μ s, est relativement faible par rapport à d’autres systèmes [29].

1.2.2 Centres NV dans le diamant

Un centre NV est composé d’un atome substitutionnel d’azote et d’une lacune dans un cristal de diamant, tel qu’illustré à la figure 1.4. Deux états de charge sont possibles : le centre peut être neutre (NV^0) ou chargé négativement (NV^-). C’est la configuration NV^- qui est utilisée pour définir un qubit. Dans cette configuration, le centre est composé de six électrons et son état fondamental a un spin total $S = 1$ [47]. Un qubit est défini entre les états de spin $m_s = 0$ et $m_s = \pm 1$.

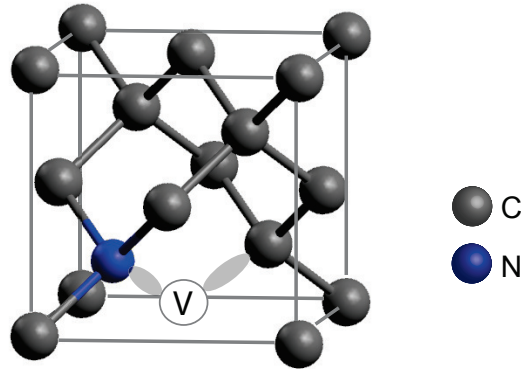


Figure 1.4 Schématisation d’un centre NV dans le diamant, composé d’un atome d’azote substitutionnel et d’une lacune (notée V pour *vacancy*).

L’initialisation du spin peut se faire aisément dans ce système en illuminant le défaut. En effet, le processus de recombinaison radiatif favorise l’émission vers l’état $m_s = 0$ [48]. De plus, la luminescence n’est possible que lorsque le spin est dans l’état $m_s = 0$, ce qui permet également la lecture du qubit. Le contrôle du spin se fait par l’entremise d’impulsions micro-ondes résonantes avec les niveaux $m_s = 0$ et $m_s = \pm 1$.

Des portes à deux qubits ont été réalisées dans ce système en utilisant le spin nucléaire d’un atome de carbone 13 dans l’environnement du défaut [48]. Récemment, des démonstrations importantes dans le contexte des communications quantiques ont également été réalisées : l’intrication de deux spins séparés par 3 m [49], par 1.3 km [50] et la téléportation d’un spin

[51].

Les avantages de ce système sont son temps de cohérence élevé, pouvant atteindre 1.8 ms dans le diamant purifié isotopiquement [52], et son faible élargissement inhomogène, de l'ordre de 10 GHz [53]. De plus, il peut en principe être opéré à température ambiante [54]. Toutefois, le système a un moment dipolaire relativement faible, de l'ordre de 5 D [47], et la majorité des photons sont émis via une réplique phonon, ce qui élargit considérablement le spectre d'émission [47]. Ce couplage avec les phonons fait en sorte que la plupart des démonstrations dans ce système ont été réalisées à des températures inférieures à 10 K. Finalement, la fabrication de cavités optiques et de dispositifs est possible dans le diamant mais les techniques de micro-fabrication utilisant ce matériau ne sont pas bien développées.

1.2.3 Centres de couleur dans le SiC

Les centres de couleur dans le SiC sont des défauts similaires aux centres NV dans le diamant. Plusieurs configurations de lacunes peuvent générer des états électroniques avec lesquels des qubits peuvent être définis [55]. Par exemple, l'état de spin d'une lacune de silicium [56] et de deux lacunes adjacentes [57], une de carbone et une de silicium, peuvent être contrôlés dans le polytype 4H-SiC à l'aide d'impulsions micro-ondes. Les états électroniques sont initialisés et lus de la même façon que ceux liés aux centres NV, c'est-à-dire à l'aide de transitions préférentielles vers un état de spin.

Les propriétés des centres de couleur dans le SiC sont similaires aux propriétés des centres NV. Le moment dipolaire des transitions optiques est de l'ordre de 5 à 10 D, les élargissements inhomogènes sont d'environ 30 GHz [58] et les temps de cohérence des spins atteignent 1.2 ms [56, 57]. Les principaux avantages de ce matériau par rapport aux centres NV sont qu'il est compatible avec des procédés de micro-fabrication et que les longueurs d'onde d'émission associées aux défauts d'intérêt s'approchent des longueurs d'onde des télécommunications. Toutefois, il demeure un matériau peu étudié jusqu'à présent.

1.2.4 Comparaison entre les systèmes

Le tableau 1.1 résume les différentes propriétés des trois systèmes présentés. Le temps de contrôle représente le temps nécessaire pour réaliser une porte à un qubit. La paramètre n_{op} représente le nombre d'opérations pouvant être réalisées sur un qubit à l'intérieur de son temps de cohérence (il s'agit donc du rapport entre le temps de cohérence et le temps de contrôle). Rappelons que bien que les moments dipolaires ne soient pas beaucoup plus grands dans les boîtes quantiques par rapport aux centres NV et au SiC, la plupart des photons émis

dans ces deux derniers systèmes proviennent d'un couplage avec des phonons. Les propriétés optiques des boîtes quantiques sont donc considérées supérieures.

Tableau 1.1 Comparaison des propriétés des candidats à la réalisation d'interfaces optiques

	Boîtes quantiques	Centres NV	SiC
Moment dipolaire (D)	10 à 60 D [36–42]	5 D [47]	5 à 10 D [56, 57]
Élargissement inhomogène	$\sim 10^5$ GHz [46]	10 GHz [53]	30 GHz [58]
Temps d'initialisation du spin	~ 10 ns [29]	$\sim 5 \mu\text{s}$ [59]	~ 500 ns [56]
Temps de cohérence	$3 \mu\text{s}$ [29]	1.8 ms [52]	1.2 ms [56, 57]
Temps de contrôle d'un qubit	~ 1 ps [29]	~ 50 ns [48]	~ 50 ns [55]
n_{op}	$3 \cdot 10^6$	$3 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$
Opération à température pièce	Non	Possible	Possible
Intégration à des dispositifs	Possible	Difficile	Possible

1.3 Plan de la thèse

Dans ce document, nous allons démontrer que les centres isoélectroniques pourraient s'avérer une alternative intéressante aux boîtes quantiques, aux centres NV dans le diamant et aux centres de couleur dans le SiC pour la réalisation d'interfaces optiques, principalement parce qu'ils combinent un fort couplage avec la lumière et un faible élargissement inhomogène. Notons que puisque les propriétés des centres isoélectroniques sont similaires à celles des boîtes quantiques, ils seront principalement comparés à ce dernier système.

Au chapitre 2, les centres isoélectroniques seront définis et une revue de leurs propriétés physiques sera réalisée. Il sera démontré que les centres isoélectroniques, comme les boîtes quantiques, peuvent lier des excitons neutres, chargés et des biexcitons. De plus, leur structure fine sera analysée à l'aide d'arguments de symétrie.

Au chapitre 3, un premier type de qubit sera considéré, soit un qubit excitonique. Nous démontrerons que ce qubit peut être initialisé, contrôlé de façon cohérente et lu optiquement, satisfaisant les critères 1,2,3 et 5 de DiVincenzo et partiellement le critère 4. L'expérience présentée s'avère le premier exemple de contrôle cohérent de qubits liés à des centres isoélectroniques jamais réalisée. De cette expérience, un moment dipolaire moyen de 27 D pour les excitons sera extrait, qui est comparable aux moments dipolaires mesurés dans les boîtes quantiques. Notons que les résultats présentés dans ce chapitre sont adaptés de la publication suivante :

G. Éthier-Majcher, P. St-Jean, G. Boso, A. Tosi, J.F. Klem et S. Francoeur,

“Complete quantum control of exciton qubits bound to isoelectronic centres”,
Nature Communications, vol. 5, p. 4980, 2014.

Au chapitre 4, le spectre de fluorescence en résonance d’excitons neutres sera présenté, indiquant que l’effet Stark AC et des états habillés peuvent être observés dans les centres isoélectroniques. Cet effet pourrait être utile pour les communications quantiques en permettant la génération de photons intriqués [60].

Les chapitres 5 et 6 présenteront un autre type de qubit pouvant être défini dans les centres isoélectroniques, soit un qubit de spin. Par rapport au qubit excitonique, le qubit de spin devrait présenter un temps de cohérence plus élevé. De plus, il est mieux adapté à l’intrication de qubits à distance.

Au chapitre 5, une analyse théorique du contrôle d’un qubit de spin à l’aide d’excitons chargés sera présentée pour un système liant à la fois des trous lourds et des trous légers, comme les centres isoélectroniques dans le GaAs. Il sera démontré qu’un tel système est avantageux par rapport aux boîtes quantiques car il permet l’initialisation, le contrôle et la lecture en un essai du spin à l’aide d’une configuration unique du champ magnétique, ce qui n’est pas possible dans les boîtes quantiques.

Au chapitre 6, nous démontrerons qu’il est possible d’implémenter le schéma théorique présenté au chapitre 5 à l’aide d’excitons chargés liés à des centres isoélectroniques de symétrie C_s qui n’avaient jamais été observés auparavant. Les résultats présentés aux chapitres 5 et 6 sont adaptés de la publication suivante :

G. Éthier-Majcher, P. St-Jean et S. Francoeur, “Light- and heavy-hole trions bound to isoelectronic centres”, *Physical Review B*, vol. 92, p. 155436, 2015.

Finalement, le chapitre 7 présentera une discussion des limitations des centres isoélectroniques et des avenues de recherche futures liées à ce système dans un contexte de traitement de l’information quantique.

CHAPITRE 2 LES CENTRES ISOÉLECTRONIQUES

Les centres isoélectroniques sont constitués d'une, de deux ou d'un petit nombre d'impuretés isovalentes dans un semi-conducteur. Pour que ces impuretés forment un centre isoélectronique, elles doivent lier des porteurs de charge et créer des niveaux d'énergie dans la bande interdite du semi-conducteur hôte ; ainsi, une impureté d'aluminium dans le GaAs, bien qu'elle soit isovalente, ne forme pas un centre isoélectronique puisqu'elle crée un niveau d'énergie résonant avec la bande de conduction. Contrairement à des donneurs ou des accepteurs, un centre isoélectronique ne peut pas fournir de porteurs de charge au matériau hôte.

De nombreuses combinaisons d'impuretés et de matériaux semi-conducteurs peuvent former des centres isoélectroniques : dans les matériaux III-V, citons les impuretés d'azote et de bismuth dans le GaP [61–63] et dans le GaAs [64–66], d'azote dans l'AlAs [67] ; dans les matériaux II-IV, les impuretés de tellure dans le ZnSe [68], d'oxygène ou de calcium dans le ZnTe [62, 69, 70] ; et finalement, les impuretés de béryllium dans le silicium [71] (bien qu'un atome de béryllium ne soit pas isovalent avec le silicium, une paire de béryllium formée d'un atome substitutionnel et d'un atome interstitiel forme un centre isoélectronique).

Bien que les centres isoélectroniques aient été pour la première fois observés dans les années 60 [61], ceux-ci n'ont jamais été étudiés dans un contexte de traitement de l'information quantique. Dans ce chapitre, nous passerons en revue les différents travaux portant sur ces centres et discuterons de leurs avantages dans ce contexte. Voici une liste des propriétés remarquables qui seront présentées :

1. Accordabilité

De nombreux centres isoélectroniques peuvent être formés en choisissant parmi une vaste sélection d'impuretés et de matériaux hôtes. Il est donc possible, jusqu'à un certain point, d'accorder leurs propriétés optiques : par exemple, leur longueur d'onde d'émission peut varier du domaine du visible à l'infrarouge. Des centres isoélectroniques émettant à une longueur d'onde approchant celles optimales pour les télécommunications ($1.3\ \mu\text{m}$ ou $1.55\ \mu\text{m}$) sont ainsi envisageables ;

2. Homogénéité

Les centres isoélectroniques, contrairement aux boîtes quantiques, ne souffrent pas d'élargissements inhomogènes causés par des variations du nombre d'atomes les composant. En effet, leur nature atomique fait en sorte que toutes variations du nombre d'impuretés formant le centre ou de leur disposition entraîne une variation importante et discrète de l'énergie d'émission qui est facilement résolue. Ainsi, en n'observant

l'émission d'une seule configuration à la fois, l'élargissement inhomogène est très faible. Rappelons que l'homogénéité optique est une propriété essentielle à la réalisation de réseaux quantiques où tous les nœuds doivent interagir à la même longueur d'onde ;

3. Symétrie

Puisque toute variation de la distance interatomique engendre une variation discrète de l'énergie du système, il est possible de travailler avec un centre isoélectronique de symétrie connue et parfaitement définie par le réseau cristallin. Des centres de haute symétrie pourraient être avantageux, par exemple, pour la génération de photons intriqués [72] ;

4. Localisation

Les porteurs de charge liés aux centres isoélectroniques sont très localisés. Ceci peut être un avantage sur deux aspects : d'abord, étant plus localisés, les porteurs sont moins susceptibles d'être affectés par leur environnement, ce qui pourrait augmenter leur temps de cohérence. De plus, il est possible d'envisager une interaction hyperfine forte entre un porteur localisé et les noyaux formant le centre. Cette interaction pourrait permettre de transférer un état quantique d'un électron à un noyau et ainsi créer un registre quantique similaire à ce qui a été réalisé à l'aide des centres NV dans le diamant [73] ;

5. Liaison de trous lourds et de trous légers

Les trous lourds et trous légers liés à un centre isoélectronique sont quasi-dégénérés. Ceci permet, comparativement aux boîtes quantiques, l'utilisation de plus de transitions optiques pour contrôler les qubits qui y sont liés. En effet, les contraintes générées par la croissance des boîtes quantiques lèvent la dégénérescence entre les trous lourds et les trous légers. Les trous légers étant à haute énergie, ils deviennent inaccessibles optiquement dans ce système ;

6. Liaison de différentes configurations de charge

Finalement, tout comme les boîtes quantiques, les centres isoélectroniques peuvent lier plusieurs configurations de charge : des électrons, des trous, des excitons, des excitons chargés et des biexcitons peuvent tous être liés (toutes les configurations ne sont cependant pas nécessairement observables dans le même centre). Or, les excitons chargés se sont avérés très utiles pour contrôler les qubits de spin dans les boîtes quantiques [29], qui ont des temps de cohérence beaucoup plus élevés que les qubits excitoniques et sont mieux adaptés aux communications quantiques.

Pour toutes ces raisons, les centres isoélectroniques représentent une plateforme intéressante pour le traitement optique de l'information quantique. Dans les prochaines sections, nous discuterons de leur mécanisme de liaison d'excitons, des différentes configurations d'impuretés

d'azote formant des centres isoélectroniques dans le GaP et le GaAs, ainsi que de l'influence de la symétrie du centre et de la configuration de charge sur la structure fine observée. Nous établirons également un modèle théorique basé sur des arguments de symétrie afin d'analyser les propriétés d'émission des centres isoélectroniques.

2.1 Mécanismes de liaison

Tout comme une boîte quantique auto-assemblée, un centre isoélectronique peut lier des excitons. Historiquement, le premier mécanisme de liaison des excitons a été proposé par Hopfield, Thomas et Lynch (modèle HTL) [61]. Selon ce modèle, la présence d'impuretés isovalentes crée un potentiel à courte portée causé par la différence d'électronégativité entre l'impureté et l'atome qu'elle substitue dans le matériau hôte. Si l'électronégativité de l'impureté est plus grande, le potentiel est attractif pour les électrons ; si elle est plus faible, il est répulsif. Par exemple, l'azote étant plus électronégatif que le phosphore, une impureté d'azote dans le GaP peut lier un électron ; il s'agit donc d'un pseudo-accepteur. Au contraire, des impuretés substitutionnelles de tellure ayant une électronégativité plus faible que le sélénium, celles-ci créent des pièges à trous dans le ZnSe ; ce sont donc des pseudo-donneurs. Un électron lié à un pseudo-accepteur (ou un trou à un pseudo-donneur) est fortement localisé : la fonction d'onde d'un électron lié à une impureté d'azote dans le GaP a été calculée à l'aide d'une méthode de pseudo-potentiels et son étendue spatiale est de l'ordre de 0.6 nm [74].

Lorsqu'un électron ou un trou est lié à un centre isoélectronique, un second porteur de charge de signe opposé peut être lié par interaction coulombienne. Par exemple, un électron piégé sur une impureté d'azote dans le GaP peut lier un trou et former un exciton. Le trou étant lié par interaction coulombienne, sa fonction d'onde est semblable à celle d'un accepteur ; elle est ainsi caractérisée par le rayon de Bohr du trou, $a_B = \varepsilon_r a_0 / m_h^*$, où ε_r est la permittivité relative du matériau hôte, a_0 le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène et m_h^* la masse effective du trou. Le rayon de Bohr du trou est typiquement de l'ordre de quelques nanomètres dans un semi-conducteur III-V. Ainsi, le porteur de charge capté par le centre isoélectronique est beaucoup plus localisé que le second porteur de charge capté par interaction coulombienne.

Notons que bien que le modèle HTL soit généralement accepté pour décrire la liaison d'un exciton à une centre isoélectronique, d'autres mécanismes de capture sont possibles. Selon un autre modèle, proposé par Allen [75], l'exciton est plutôt lié par les contraintes introduites par le centre isoélectronique dans le réseau cristallin. Celles-ci génèrent un potentiel attractif à la fois pour les électrons et les trous, ce qui implique que contrairement au modèle HTL, l'exciton est capté en une seule étape. Or, des mesures d'excitation de la photoluminescence (PLE) dans le GaP ont montré que dépendamment de la configuration du centre isoélectronique

considéré, un ou l'autre des modèles est plus approprié [76]. En effet, le modèle HTL décrit bien la capture de l'exciton lorsque celui-ci est fortement lié au centre isoélectronique, alors que le modèle de Allen semble plus approprié lorsque l'exciton est faiblement lié.

2.2 Configurations des centres isoélectroniques

Les propriétés d'émission d'un exciton lié à un centre isoélectronique dépendent fortement de la configuration de ce dernier. Le nombre d'impuretés formant le centre et la distance entre celles-ci a en effet un impact significatif sur l'énergie d'émission. Dans cette section, nous présenterons le spectre d'émission d'impuretés d'azote dans le GaP et dans le GaAs : le premier système constitue un exemple de choix pour illustrer les nombreuses configurations possibles d'azote liant des excitons alors que le second système sera étudié dans les chapitres subséquents.

2.2.1 Les centres isoélectroniques d'azote dans le GaP

Les centres isoélectroniques d'azote dans le GaP ont été observés pour la première fois il y a plus de cinquante ans par Thomas et Hopfield [61]. La figure 2.1 présente les spectres de photoluminescence (PL) du GaP obtenus à l'époque pour trois concentrations d'azote différentes. Nous remarquons que pour de faibles concentrations d'azote, le spectre est dominé par les raies *A* et *B* (figure 2.1 (a)). Ces raies d'émission ont été attribuées à des excitons liés à des atomes d'azote uniques. La présence de deux raies est attendue et est due à l'interaction d'échange entre l'électron et le trou formant l'exciton. La structure fine sera discutée plus en détail à la section 2.3. Notons que les raies identifiées par les indices (LO) et (TO) sont des répliques phonons des raies principales *A* et *B*, c'est-à-dire qu'un photon et un phonon LO (longitudinal optique) ou TO (transverse optique) du GaP sont émis simultanément. La raie d'émission à ~ 2.27 eV non-identifiée à la figure 2.1 (a) est une réplique phonon faisant intervenir un mode de vibration local de l'atome d'azote [61].

Lorsque la concentration d'azote augmente (figure 2.1 (b) et (c)), le spectre d'émission devient beaucoup plus riche. De nouvelles raies, identifiées NN_i et attribuées à des excitons liés à des paires d'azote apparaissent au détriment des raies *A* et *B*. En augmentant la concentration d'azote, le nombre de paires augmente nécessairement, mais l'émission provenant des atomes d'azote isolés atteint un seuil pour éventuellement diminuer. Selon l'analyse de Thomas et Hopfield, plus les deux atomes d'azote formant la paire sont rapprochés, plus le potentiel permettant de lier un électron est profond. Ainsi, la raie à plus basse énergie, NN_1 , est attribuée à une paire d'azote dont les deux atomes sont en configuration de plus proche

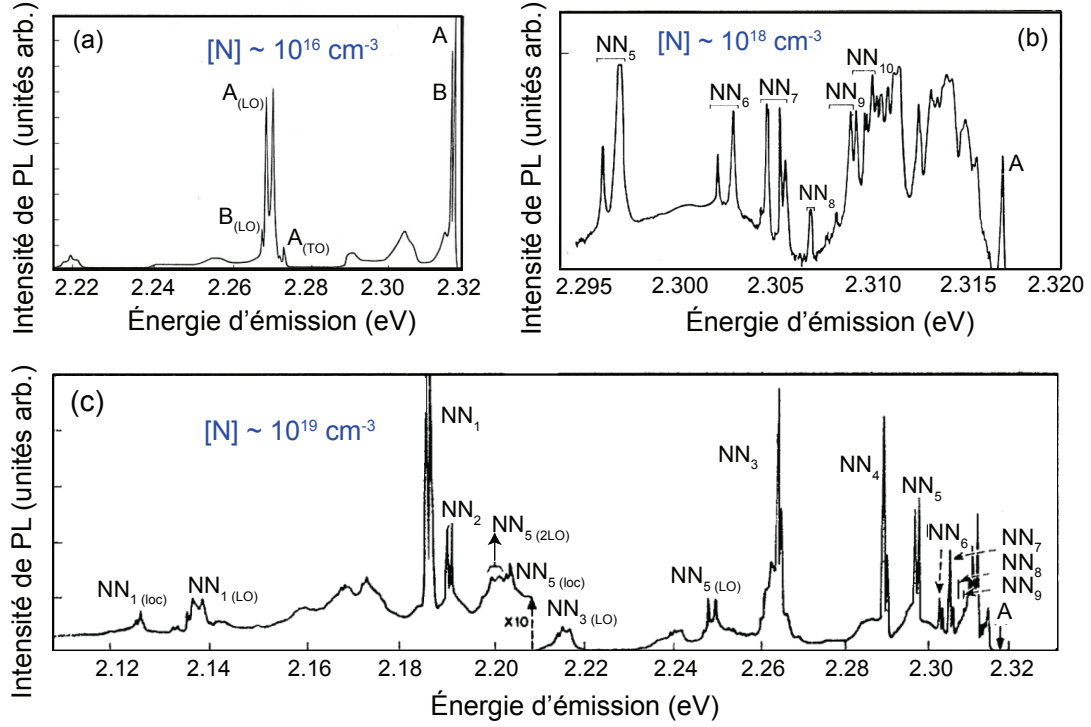


Figure 2.1 Spectres de photoluminescence de trois échantillons de GaP ayant des concentrations d'azote de (a) 10^{16} cm^{-3} , (b) 10^{18} cm^{-3} et (c) 10^{19} cm^{-3} , adaptée avec permission de Thomas et Hopfield [61].

voisin ; NN_2 à une paire en second plus proche voisin et ainsi de suite.

Bien que cette attribution ait une valeur qualitative, elle n'a pas été confirmée par des modèles théoriques plus élaborés. En effet, des calculs théoriques ont démontré une variation non-monotone des niveaux d'énergie des paires d'azote en fonction de leur distance interatomique [74, 77]. Les paires orientées dans la famille de directions $\langle 110 \rangle$ formeraient les niveaux d'énergie les plus profonds. De plus, selon les calculs théoriques, NN_2 est attribuée à un triplet plutôt qu'à une paire d'azote [74, 78]. Notons tout de même que ces calculs n'ont pas réussi à reproduire les niveaux d'énergies observés expérimentalement et permettent difficilement de conclure sur les configurations des différentes paires d'azote.

Des mesures de photoluminescence sous contraintes hydrostatiques ont également démontré que l'assignation des paires de Thomas et Hopfield est imparfaite [79]. En appliquant une contrainte dans plusieurs directions connues du cristal, il est possible d'obtenir des informations sur la symétrie des paires d'azote et donc sur l'orientation de celles-ci. Or, la symétrie trouvée de NN_7 (C_{2v}) ne correspond pas à une orientation en septième plus proche voisin. Notons toutefois que cette étude n'a pas permis d'obtenir des conclusions claires sur la symétrie de la plupart des paires ; seules les symétries de NN_1 , NN_4 et NN_7 (C_{2v}) et de NN_3

(C_s) ont pu être identifiées.

2.2.2 Les centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs

Contrairement au GaP, un atome d'azote unique dans le GaAs ne crée pas de niveaux dans la bande interdite du semi-conducteur. Le niveau d'azote est plutôt résonant avec la bande de conduction à environ 150 meV au-dessus du minimum d'énergie de celle-ci [64]. Ainsi, beaucoup moins de configurations de paires d'azote peuvent lier des excitons. La figure 2.2 montre le spectre d'émission d'un échantillon de GaAs dont la croissance a été réalisée par épitaxie en phase vapeur en introduisant (en haut) ou non (en bas) de l'ammoniac lors de la croissance. Le spectre de photoluminescence est dominé par des centres isoélectroniques d'azote lorsque la croissance fait intervenir l'ammoniac. Les différents centres sont indiqués par la notation X_i et comme précédemment, plusieurs répliques phonons sont observables. Notons que la raie notée FE représente l'émission d'excitons libres, FB représente l'émission d'un porteur passant d'un état libre à lié et DAP l'émission d'une paire donneur-accepteur.

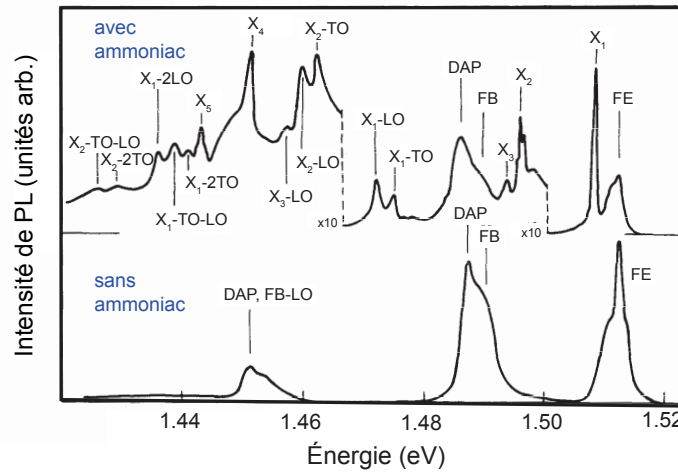


Figure 2.2 Spectres de photoluminescence de deux échantillons de GaAs. Le spectre du haut présente l'émission liée à des impuretés d'azote introduites lors de la croissance en utilisant de l'ammoniac. La spectre du bas provient d'un échantillon n'ayant pas été dopé à l'azote. (Adaptée avec permission de Schwabe *et al.* [80])

Les énergies d'émission des centres isoélectroniques illustrés à la figure 2.2 sont données au tableau 2.1. Notons que les centres X_3 , X_4 et X_5 n'apparaissent qu'à des flux d'ammoniac beaucoup plus élevés que les centres X_1 et X_2 . Ceci pourrait indiquer que les centres X_{3-5} sont formés de triplets d'azote. Cette hypothèse a été confirmée par des mesures subséquentes

du spectre de PL du GaAs dopé à l'azote, où seulement deux configurations de centres isoélectroniques ont été identifiées par Liu *et al.* [65].

Tableau 2.1 Énergie d'émission des différents centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs. La correspondance entre les notations des figures 2.2 et 2.3 est donnée.

Notation de Schwabe [80]	Notation de Liu [65]	Énergie (eV)
X ₁	NN ₁	1.5082
X ₂	NN ₂	1.4959
X ₃		1.4935
X ₄		1.4515
X ₅		1.4432

Des mesures de PL sous pression hydrostatique ont également été réalisées par ces mêmes auteurs [65, 81]. Or, l'application d'une contrainte révèle la présence d'autres configurations de paires qui sont résonantes avec la bande de conduction à pression nulle ; en effet, les états liés aux paires d'azote étant très localisés, ils sont moins sensibles à des variations de contraintes que les états électroniques de la bande de conduction. Ainsi, à suffisamment haute pression, l'émission de nouveaux centres isoélectroniques devient observable. La figure 2.3 montre l'énergie d'émission des différentes configurations d'azote (notées NN_i par analogie avec le GaP) en fonction de la pression appliquée à l'échantillon. Elle montre également l'évolution de l'énergie d'émission d'un exciton lié à un donneur (Dr), qui est similaire à l'évolution du minimum de la bande de conduction. Des paires de NN₁ à NN₉ ont pu être observées grâce à ces mesures sous pression hydrostatique. Pour la suite, nous allons adopter la notation de Liu *et al.* pour désigner les centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs. Le lien entre la notation présentée à la figure 2.2 et celle de Liu est donné au tableau 2.1.

Les conclusions de Liu *et al.* sur les énergies des différentes paires d'azote sont supportées par des calculs théoriques [74]. En effet, ceux-ci ont conclu que seulement deux configurations de paires d'azote forment des niveaux liés dans la bande interdite du GaAs. Ces deux configurations sont les premier et quatrième plus proches voisins, selon l'axe [110] du cristal. Selon les calculs théoriques, une paire en quatrième plus proche voisin lie plus fortement l'électron et ainsi, NN₂ serait dans cette configuration alors que NN₁ correspondrait à une paire d'azote en premiers plus proches voisins. L'orientation de NN₁ et NN₂ selon l'axe [110] a été confirmée en analysant la structure fine de l'émission de paires d'azote uniques [82]. Ces résultats seront décrits plus en détails à la section 2.3.

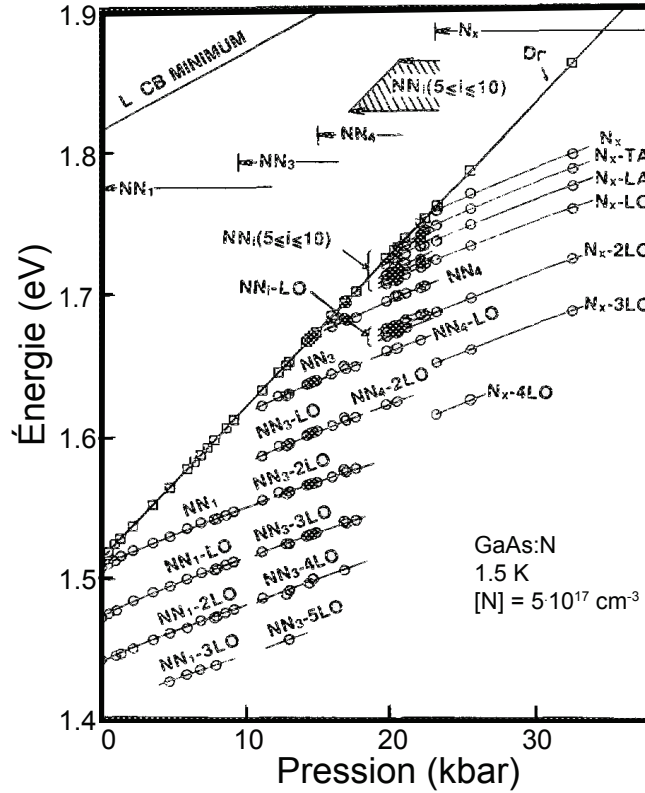


Figure 2.3 Énergies d'émission des différentes paires d'azote, notées NN_i , en fonction de la pression hydrostatique appliquée sur l'échantillon. L'énergie d'émission d'excitons liés à des donneurs (Dr) est également indiquée. (Adaptée avec permission de Liu *et al.* [65])

2.2.3 Comparaison entre les deux matériaux hôtes

Afin de définir certaines propriétés générales des centres isoélectroniques d'azote dans le GaP et le GaAs, il est utile de comparer les différents niveaux d'énergie observés par rapport à l'énergie d'un atome d'azote isolé. Cette comparaison est illustrée à la figure 2.4. Nous constatons que les deux systèmes sont qualitativement similaires. En effet, l'écart en énergie entre les différents niveaux tend à diminuer pour les niveaux se rapprochant du niveau de l'azote isolé. Ceci est attendu selon la description de Thomas et Hopfield. De plus, les niveaux à basse énergie dans les deux systèmes sont attribués à des paires orientées selon [110].

Bien que la configuration atomique exacte de la plupart des paires d'azote à l'origine des raies observées dans le GaAs et le GaP demeure incertaine, il est évident que des variations de la séparation inter-atomique des paires engendre des variations discrètes de l'énergie d'émission de celles-ci. Les centres isoélectroniques ont donc une homogénéité qui leur est conférée par leur structure atomique. En n'observant qu'une seule configuration atomique, l'élargissement

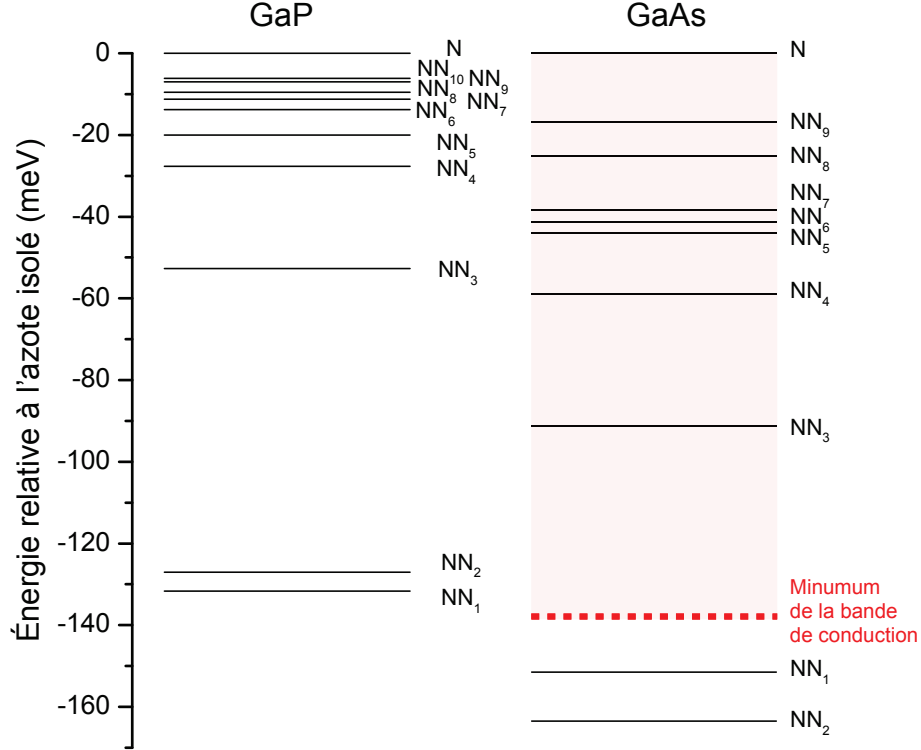


Figure 2.4 Énergie des différents niveaux de paires d'azote par rapport à l'énergie du niveau de l'azote unique dans le GaP et le GaAs. Deux niveaux seulement sont observés dans la bande interdite du GaAs. Les données sont tirées de [61] pour le GaP et de [65] pour le GaAs.

inhomogène mesuré en macro-PL sur un ensemble de centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs peut être inférieur à $100 \mu\text{eV}$ [83] (25 GHz). Cette propriété les distingue des boîtes quantiques, pour lesquelles les élargissements inhomogènes sont de l'ordre de plusieurs meV. Cette propriété est très importante pour la réalisation de réseaux quantiques.

2.3 Structure fine

Les spectres de PL présentés à la section précédente sont des mesures d'ensemble. Or, il est souvent très utile de mesurer l'émission d'un seul centre isoélectronique afin de révéler certaines propriétés masquées par l'élargissement inhomogène. Par exemple, la structure fine excitonique et la polarisation des raies d'émission peuvent être analysées grâce à des mesures de centres uniques. La PL résolue spatialement, ou micro-PL, peut être réalisée en utilisant la microscopie confocale, qui est une technique expérimentale largement répandue.

À ce jour, il existe plusieurs exemples de mesures de centres isoélectroniques uniques : des paires d'azote dans le GaAs [82–84], dans le GaP [85, 86] et dans l'AlAs [67] et des paires

de tellure dans le ZnSe [68, 87] ont été résolues. Mentionnons que la résolution optique d'un centre isoélectronique formé d'une seule impureté représente un très grand défi expérimental, puisque cela nécessiterait une concentration d'impuretés de l'ordre de 10^{13} cm^{-3} . Or, il est très difficile de générer des échantillons avec une concentration d'impuretés aussi basse et bien contrôlée. Toutefois, la résolution de paires d'impuretés est beaucoup plus facile, puisqu'elle nécessite des concentrations de l'ordre de 10^{17} cm^{-3} afin d'obtenir environ une paire par μm^2 , concentrations atteignables par dopage ou implantation.

2.3.1 Polarisation

Dans cette section, nous développons un modèle théorique basé sur des arguments de symétrie permettant de décrire la structure fine en polarisation des excitons liés à des centres isoélectroniques de symétrie D_{2d} , C_{3v} et C_{2v} . Ce modèle est dérivé selon Francoeur et Marcet [88]. Notons qu'il ne permet pas de prédire l'énergie des différentes transitions ; seuls le nombre de transition et leur polarisation seront analysés.

Approximation de la fonction enveloppe

Le modèle est développé dans le cadre de l'approximation de la fonction enveloppe. Cette approximation permet de séparer les fonctions d'onde de l'électron Ψ_e et du trou Ψ_h de la façon suivante :

$$\begin{aligned}\Psi_e &= F_e(\mathbf{r}_e)u_e(\mathbf{r}_e) \\ \Psi_h &= F_h(\mathbf{r}_h)u_h(\mathbf{r}_h),\end{aligned}\tag{2.1}$$

où $F_{e,h}$ sont des fonctions enveloppe et $u_{e,h}$ sont respectivement les fonctions d'onde atomiques des électrons dans la bande de conduction et des trous dans la bande de valence. Seule la partie atomique des fonctions d'onde est responsable de la structure fine ; la fonction enveloppe n'est liée qu'au potentiel créé par le centre isoélectronique et est la même pour tous les états composant la structure fine. Elle ne sera donc pas considérée pour décrire la structure fine des excitons.

L'approximation de la fonction enveloppe est valide lorsque le potentiel créé par l'impureté est faible et varie lentement sur une distance comparable au paramètre de maille du solide. La première condition est respectée pour les centres isoélectroniques puisqu'ils génèrent des états peu profonds. Bien que la deuxième condition ne soit pas nécessairement respectée puisque le potentiel des centres isoélectroniques est très localisé, les résultats obtenus grâce à cette approximation décrivent de façon satisfaisante leur structure fine.

Fonctions de base

Développons maintenant les fonctions d'onde atomiques au point Γ d'un semi-conducteur. La bande de conduction étant de type s , le moment cinétique orbital de l'électron est nul. Ainsi, deux fonctions atomique de base sont suffisantes pour exprimer les deux états de spin de l'électron à l'aide des nombres quantiques $|S, S_z\rangle$: $\alpha_e = |1/2, 1/2\rangle$ et $\beta_e = |1/2, -1/2\rangle$.

La bande de valence étant de type p , le moment cinétique orbital des trous est de $L = 1$. Puisque les trous ont également un spin de $1/2$, le moment cinétique total peut prendre les valeurs $J = \{3/2, 1/2\}$. Or, la bande split-off, pour laquelle $J = 1/2$, est poussée à plus haute énergie par l'interaction spin-orbite ; elle sera donc négligée. Ainsi, seulement quatre fonctions de base sont considérées pour les trous, exprimées en fonction des nombres quantiques $|J, J_z\rangle$: $\phi_1 = |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$, $\phi_2 = |\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$, $\phi_3 = |\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$ et $\phi_4 = |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$. Les fonctions $\phi_{1,4}$ décrivent des états trous lourds et les fonctions $\phi_{2,3}$ décrivent des états trous légers.

Il est possible de passer de la base couplée $|J, J_z\rangle$ à la base découplée $|L_z, S_z\rangle$, où S_z s'applique ici sur le trou, en utilisant une table de Clebsch-Gordan. Dans cette dernière base, les fonctions d'onde du trou s'écrivent

$$\begin{aligned}\phi_1 &= |1, 1/2\rangle \\ \phi_2 &= \frac{1}{\sqrt{3}} |1, -1/2\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} |0, 1/2\rangle \\ \phi_3 &= \frac{1}{\sqrt{3}} |-1, 1/2\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} |0, -1/2\rangle \\ \phi_4 &= |-1, -1/2\rangle,\end{aligned}\tag{2.2}$$

où les fonctions associées aux états $L_z = \{-1, 0, 1\}$ sont les harmoniques sphériques Y_1^{-1} , Y_1^0 et Y_1^1 .

Une base de fonctions d'onde excitoniques est obtenue en couplant les fonctions d'onde électroniques aux fonctions d'onde des trous. Huit états orthonormaux sont ainsi formés et présentés au tableau 2.2.

Bien que cette base de fonctions soit tout à fait adéquate, il est plus judicieux de travailler dans une base adaptée au groupe de symétrie associé au potentiel. Ainsi, nous allons effectuer un changement de base de façon à ce que chaque fonction se transforme selon une représentation irréductible de ce groupe. Ceci est motivé par le fait que, selon la théorie des groupes, à chaque valeur propre d'un Hamiltonien est associée une fonction propre se transformant selon une représentation irréductible unique du groupe de symétrie. Ce changement de base

Tableau 2.2 Exemple de base de fonctions excitoniques orthonormales

Fonctions de base
$\psi_1 = \alpha_e \phi_1$
$\psi_2 = \alpha_e \phi_2$
$\psi_3 = \alpha_e \phi_3$
$\psi_4 = \alpha_e \phi_4$
$\psi_5 = \beta_e \phi_1$
$\psi_6 = \beta_e \phi_2$
$\psi_7 = \beta_e \phi_3$
$\psi_8 = \beta_e \phi_4$

permettra de faire ressortir de façon explicite les polarisations des états excitoniques. Notons que les tables de la théorie des groupes permettent de trouver la base adaptée au groupe de symétrie.

Éléments de matrice de transition

À partir des fonctions atomiques de base, il est possible de calculer la probabilité de transition de l'exciton vers l'état fondamental. Or, celui-ci doit être de symétrie sphérique et ainsi se transformer selon Γ_1 pour être invariant selon tous les éléments de symétrie du système. L'état fondamental s'écrit ainsi [88]

$$\psi_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} (-\beta_e \alpha_h + \alpha_e \beta_h), \quad (2.3)$$

où α_h et β_h sont les deux états de spin du trou (*up* et *down*).

Selon la règle d'or de Fermi, la probabilité de transition est proportionnelle au carré des éléments de matrice $|M_{i,0}|^2 = |\langle \psi_i | \mathbf{r} | \psi_0 \rangle|^2$. Ces éléments de matrice indiquent la polarisation d'une transition : par exemple, pour une transition polarisée selon x , $\langle \psi_i | x | \psi_0 \rangle \neq 0$ et $\langle \psi_i | y | \psi_0 \rangle = \langle \psi_i | z | \psi_0 \rangle = 0$. Ils sont aisément calculés en écrivant les états ϕ_i dans la base découplée donnée à l'équation 2.2.

Nous allons maintenant présenter les fonctions de base de trois groupes de symétrie et en déduire les règles de sélection en polarisation.

Symétrie D_{2d}

Pour l'analyse qui suit, nous posons d'abord la direction de croissance de l'échantillon selon $[001]$ et nous définissons les axes de référence du laboratoire, x' , y' et z' respectivement selon $[\bar{1}10]$, $[\bar{1}\bar{1}0]$ et $[001]$. L'axe z' correspond à l'axe optique du système et les polarisations seront analysées par rapport à cet axe.

Pour analyser les propriétés d'émission d'une nanostructure ayant une symétrie D_{2d} , nous allons prendre comme exemple une paire d'azote orientée selon la famille de directions $\langle 100 \rangle$ dans le GaAs. Nous distinguons deux cas présentés à la figure 2.5 : en (a), la paire est orientée dans le plan de l'échantillon et perpendiculairement à l'axe optique du système alors qu'en (b), elle est orientée parallèlement à l'axe optique. Nous prenons l'axe z selon la paire d'azote et les axes x et y selon les deux axes C_2 perpendiculaires à la paire.

Les fonctions excitoniques de base en symétrie D_{2d} , leur représentation et les éléments de matrice d'interaction dipolaire sont donnés au tableau 2.3. La direction de polarisation de chaque état de base est également indiquée par un exposant entre parenthèses. La représentation Γ_5 étant bidimensionnelle, deux fonctions de base dégénérées formant un doublet se transforment selon cette représentation. Les quatre premières fonctions représentent des états trous lourds alors que les quatre dernières sont des états trous légers. Or, les fonctions de base ne sont pas nécessairement les états excitoniques observés, car certaines interactions introduisent un mélange entre les trous lourds et trous légers. Toutefois, ce mélange doit se faire entre des fonctions de base d'une même représentation pour que les fonctions propres de l'hamiltonien n'aient qu'une seule représentation. Ainsi, ψ_6 est une fonction propre de l'hamiltonien puisqu'elle est l'unique fonction se transformant comme Γ_4 .

Tableau 2.3 Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie D_{2d} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire (selon [88])

Fonctions de base	Représentation	Élément de matrice
$\psi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_4 + \alpha_e\phi_1)$	Γ_1	$(0, 0, 0)$
$\psi_2 = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_4 - \alpha_e\phi_1)$	Γ_2	$(0, 0, 0)$
$\psi_3^{(x)} = -\frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_1 + \alpha_e\phi_4)$	Γ_5	$(\frac{i}{\sqrt{2}}, 0, 0)$
$\psi_4^{(y)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_1 - \alpha_e\phi_4)$		$(0, \frac{-i}{\sqrt{2}}, 0)$
$\psi_5 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_2 + \alpha_e\phi_3)$	Γ_3	$(0, 0, 0)$
$\psi_6^{(z)} = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_2 - \alpha_e\phi_3)$	Γ_4	$(0, 0, i\sqrt{\frac{2}{3}})$
$\psi_7^{(x)} = -\frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_3 + \alpha_e\phi_2)$	Γ_5	$(\frac{-i}{\sqrt{6}}, 0, 0)$
$\psi_8^{(y)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_3 - \alpha_e\phi_2)$		$(0, \frac{-i}{\sqrt{6}}, 0)$

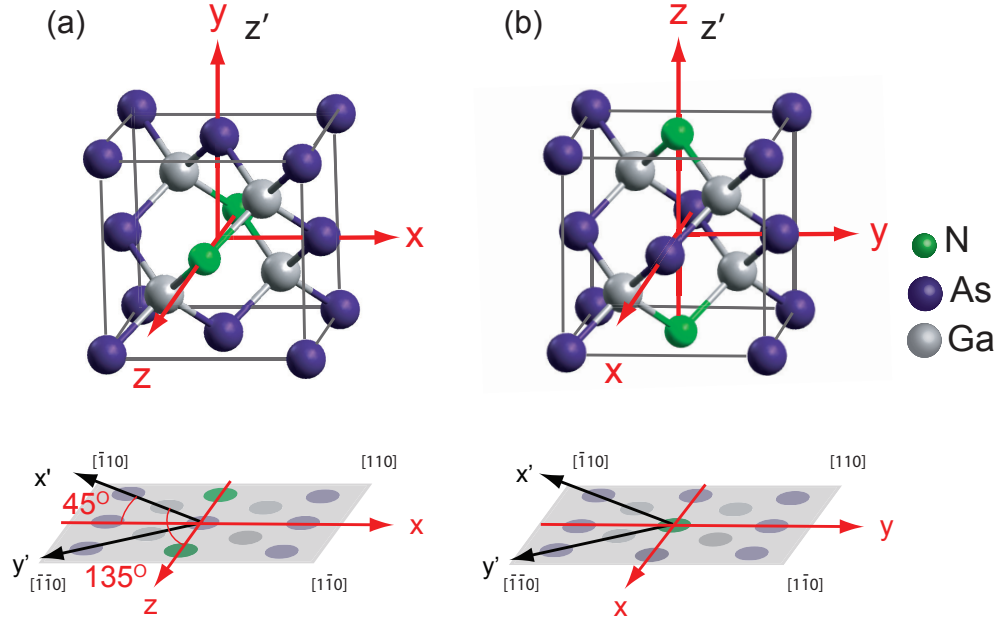


Figure 2.5 Paire d'azote de symétrie D_{2d} (a) dans le plan de l'échantillon et (b) hors plan. Les axes x, y et z sont relatifs à la paire. L'axe z est choisi selon la paire et les axes x et y selon les axes de symétrie C_2 . Les axes x', y' et z' sont les axes du laboratoire. La projection des axes x, y et z sur le plan de l'échantillon est montrée en rouge pour les deux configurations.

Analysons les polarisations attendues pour les deux cas présentés à la figure 2.5. Notons tout d'abord que trois états sont noirs et ne seront jamais observés puisque leurs éléments de matrice d'interaction dipolaire sont nuls. La possibilité d'observer les autres états dépend de l'orientation de la paire. Lorsque celle-ci est orientée dans le plan de l'échantillon, seules les transitions polarisées selon x (ψ_3 et ψ_7) et z (ψ_6) sont observables. Puisque les projections des directions x et z sur le plan de l'échantillon sont respectivement à 45° et 135° par rapport à l'axe x' , deux transitions polarisées linéairement à un angle de 45° et une autre polarisée à 135° sont attendues pour cette configuration. Notons que si la paire était orientée selon l'axe x plutôt que l'axe z à la figure 2.5 (a), deux transitions seraient observées à 135° et une seule à 45° .

Pour la configuration présentée à la figure 2.5 (b), la structure fine en polarisation est différente. Puisque seules les transitions polarisées en x et y peuvent être observées, quatre transitions sont possibles. Toutefois, les états ψ_3 et ψ_4 étant dégénérés et de polarisations orthogonales, leur émission combinée résulte en l'observation d'une seule raie non-polarisée. Le raisonnement est le même pour les états ψ_7 et ψ_8 . Ainsi, cette configuration est caractérisée par deux raies d'émission non-polarisées.

Symétrie C_{3v}

Une paire d'azote orientée dans la direction $[111]$ du GaAs est un exemple de défaut de symétrie C_{3v} . Tel que présenté à la figure 2.6, l'axe z est choisi selon la paire d'azote et les axes x et y respectivement selon $[11\bar{2}]$ et $[\bar{1}10]$. Puisque toutes les directions $\langle 111 \rangle$ sont orientées de façon similaire par rapport à l'axe optique z' , nous ne considérons que le cas présenté à la figure 2.6. Les fonctions de base des excitons en symétrie C_{3v} sont données au tableau 2.4. Notons que la représentation Γ_3 étant bidimensionnelle, les couples de fonctions se transformant selon cette représentation sont dégénérés. Tout comme en symétrie D_{2d} , un couple de fonctions de base dégénérées se traduit par une transition non-polarisée. Ainsi, trois transitions non-polarisées sont attendues en symétrie C_{3v} . Une quatrième transition, polarisée linéairement selon z , sera mesurée à 90° , parallèlement à y' . Notons qu'une rotation de la paire de 90° par rapport à z' entraînera l'observation de trois raies non-polarisées et une polarisée linéairement à 0° .

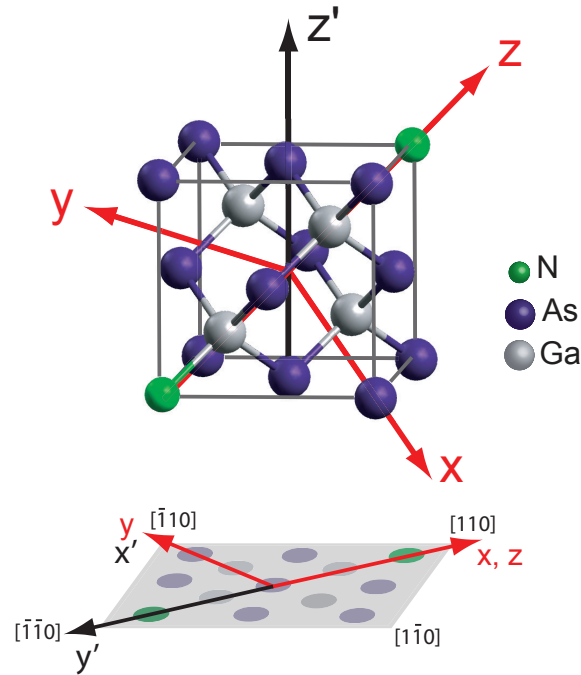


Figure 2.6 Paire d'azote de symétrie C_{3v} . Les axes x , y et z sont respectivement parallèles aux directions $[11\bar{2}]$, $[\bar{1}10]$ et $[111]$. Les projections des axes x et z sur le plan de l'échantillon sont dans la direction opposée à y' alors que y coïncide avec x' .

Tableau 2.4 Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie C_{3v} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire (selon [88]). Les exposants (1) et (2) indiquent des polarisations circulaires droite et gauche.

Fonctions de base	Représentation	Élément de matrice
$\psi_1^{(1)} = \frac{\beta_e}{\sqrt{2}}(\phi_1 + i\phi_4)$	Γ_3	$\frac{1}{2\sqrt{2}}(1, -i, 0)$
$\psi_2^{(2)} = \frac{\alpha_e}{\sqrt{2}}(i\phi_1 - \phi_4)$		$\frac{1}{2\sqrt{2}}(-1, -i, 0)$
$\psi_3^{(1)} = \frac{\beta_e}{\sqrt{2}}(\phi_1 - i\phi_4)$	Γ_3	$\frac{1}{2\sqrt{2}}(1, i, 0)$
$\psi_4^{(2)} = \frac{\alpha_e}{\sqrt{2}}(-i\phi_1 - \phi_4)$		$\frac{1}{2\sqrt{2}}(-1, i, 0)$
$\psi_5^{(z)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_2 + \alpha_e\phi_3)$	Γ_1	$(0, 0, \sqrt{\frac{2}{3}})$
$\psi_6 = \frac{i}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_2 - \alpha_e\phi_3)$	Γ_2	$(0, 0, 0)$
$\psi_7^{(1)} = \alpha_e\phi_2$	Γ_3	$\frac{1}{2\sqrt{3}}(-1, i, 0)$
$\psi_8^{(2)} = \beta_e\phi_3$		$\frac{1}{2\sqrt{3}}(-1, -i, 0)$

Symétrie C_{2v}

Finalement, la figure 2.7 présente la configuration atomique d'une paire de symétrie C_{2v} . Nous distinguons deux cas : en (a), la paire est dans le plan de l'échantillon et orientée selon $[1\ 1\ 0]$ et en (b), la paire est hors-plan et orientée selon $[1\ 0\ 1]$. Dans les deux cas, l'axe z est parallèle à l'axe de symétrie C_2 , l'axe y est selon la paire et l'axe x perpendiculaire à y et z . Ces axes sont illustrés à la figure 2.7 ainsi que leur projection dans le plan de l'échantillon.

Les fonctions excitoniques de base du groupe de symétrie C_{2v} , leur représentation et leurs éléments de matrice sont donnés au tableau 2.5. Nous constatons que trois états de base sont noirs et cinq sont brillants, polarisés linéairement selon les axes x , y ou z . Toutefois, le mélange entre les fonctions d'onde trous lourds et trous légers de représentation Γ_1 rend un sixième état excitonique brillant, polarisé selon z . Ainsi, six transitions sont possibles, deux polarisées en x , deux en y et deux en z . Dans le cas d'une paire dans le plan de l'échantillon, les transitions polarisées en z sont inaccessibles. Ainsi, quatre transitions sont attendues, polarisées à 0° et 90° , c'est-à-dire selon les projections de x et y dans le plan de l'échantillon.

Pour une paire hors-plan, les six transitions peuvent théoriquement être observées : quatre d'entre elles sont polarisées à 45° , soit selon les projections de y et de z dans le plan de l'échantillon, et deux sont polarisées à 135° (ou -45°). Notons qu'une rotation de la paire de 90° par rapport à l'axe optique entraîne un renversement des polarisations, soit quatre transitions à 135° et deux à 45° .

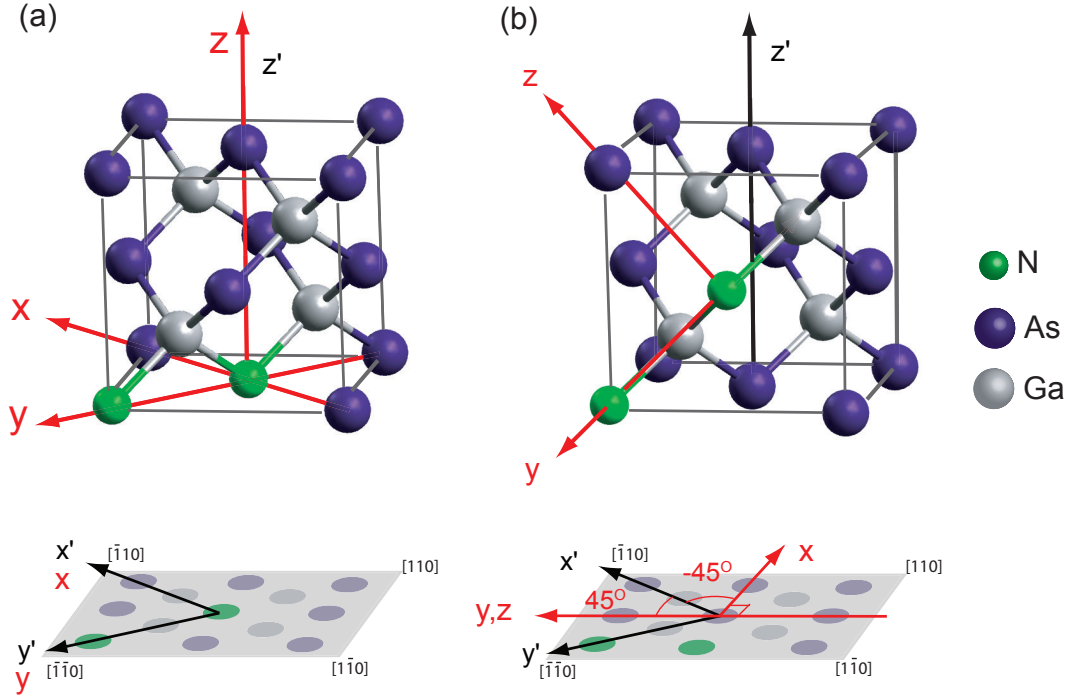


Figure 2.7 Paire d'azote de symétrie C_{2v} (a) dans le plan de l'échantillon et (b) hors plan. Les axes x, y et z sont relatifs à la paire. L'axe z est l'axe C_2 et l'axe y est choisi selon la paire. Les axes x', y' et z' sont les axes du laboratoire. Les projections des axes x, y et z sur le plan de l'échantillon sont montrées pour les deux configurations.

Tableau 2.5 Fonctions excitoniques de base dans le groupe de symétrie C_{2v} , leur représentation et l'élément de matrice d'interaction dipolaire

Fonctions de base	Représentation	Élément de matrice
$\psi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_4 + \alpha_e\phi_1)$	Γ_1	$(0,0,0)$
$\psi_2^{(x)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_1 + \alpha_e\phi_4)$	Γ_2	$(\frac{1}{\sqrt{2}}, 0, 0)$
$\psi_3 = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_4 + \alpha_e\phi_1)$	Γ_3	$(0,0,0)$
$\psi_4^{(y)} = \frac{i}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_1 + \alpha_e\phi_4)$	Γ_4	$(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, 0)$
$\psi_5^{(z)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_2 + \alpha_e\phi_3)$	Γ_1	$(0, 0, \sqrt{\frac{2}{3}})$
$\psi_6^{(x)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_3 + \alpha_e\phi_2)$	Γ_2	$(-\frac{1}{\sqrt{6}}, 0, 0)$
$\psi_7 = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta_e\phi_2 + \alpha_e\phi_3)$	Γ_3	$(0,0,0)$
$\psi_8^{(y)} = \frac{i}{\sqrt{2}}(-\beta_e\phi_3 + \alpha_e\phi_2)$	Γ_4	$(0, \frac{1}{\sqrt{6}}, 0)$

Résumé des polarisations

Le tableau 2.6 présente un résumé du nombre de transitions et leur polarisation pour les différentes configurations analysées. Ce tableau est valide lorsque l'axe optique est orienté selon $[001]$.

Tableau 2.6 Nombre de transitions et polarisations pour les différentes configurations de paires d'azote analysées (np signifie non-polarisée) lorsque l'axe optique est selon $[001]$

Symétrie	Configuration	Nombre de transitions	Polarisations
D_{2d}	Dans le plan	3	$45^\circ, 45^\circ, 135^\circ$
	Hors-plan	2	np, np
C_{3v}		4	np, np, np, 0°
C_{2v}	Dans le plan	4	$0^\circ, 90^\circ, 90^\circ, 0^\circ$
	Hors-plan	6	$45^\circ, 45^\circ, 135^\circ, 135^\circ, 45^\circ, 45^\circ$

Polarisations des paires d'azote dans le GaAs

Grâce à des mesures de micro-PL des centres NN_1 et NN_2 dans le GaAs, il a été possible de confirmer les prédictions théoriques affirmant que les deux centres sont des paires d'azote de symétrie C_{2v} . La figure 2.8 présente des spectres de micro-PL résolus en polarisation linéaire révélant la structure fine du centre NN_1 émettant à ~ 1508 meV et attribué à une paire d'azote en configuration de premier plus proche voisin [84, 89]. La polarisation de l'émission est analysée à l'aide d'une lame demi-onde dont l'orientation de l'axe rapide peut varier et d'un polariseur linéaire fixe.

En (a), deux transitions polarisées à 0° et deux autres à 90° sont observées, tel qu'attendu pour une paire C_{2v} dans le plan. En (b), pour une paire hors-plan, seulement cinq des six transitions sont observées, trois polarisées à 45° et deux à 135° . Ceci est expliqué par un faible mélange entre les trous lourds et les trous légers : un des deux états polarisés selon z garde alors une forte proportion de la fonction de base ψ_1 qui est un état noir. Ainsi, bien que la transition soit théoriquement permise, sa force d'oscillateur est trop faible pour être observée [89].

La figure 2.9 présente un spectre de micro-PL résolu en polarisation du centre NN_2 [82] attribué à une paire d'azote en configuration de quatrième voisin, de symétrie C_{2v} . Le spectre est de nouveau consistant avec une paire dans le plan de symétrie C_{2v} puisque 4 transitions polarisées linéairement à 0° et 90° sont observées.

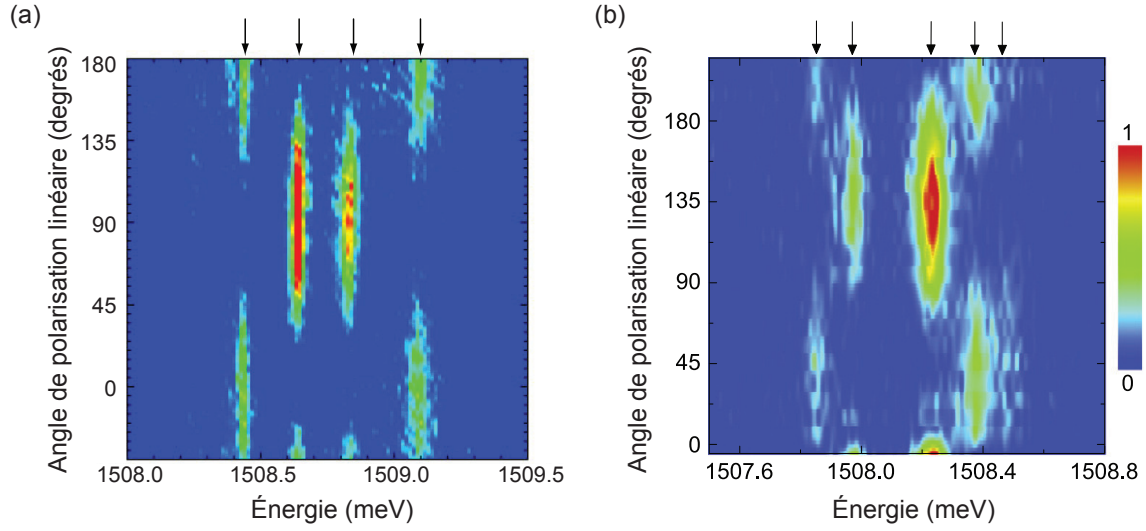


Figure 2.8 Spectres de PL résolus en polarisation linéaire montrant la structure fine d'une paire d'azote de configuration NN_1 et de symétrie C_{2v} (a) dans le plan de l'échantillon et (b) hors plan. Les transitions observées sont indiquées par des flèches. Les figures sont adaptées avec permission de Marcet *et al.* [84] et Ouellet-Plamondon *et al.* [89].

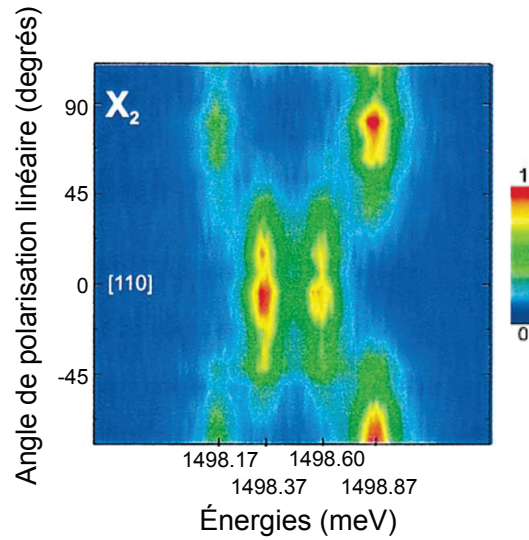


Figure 2.9 Spectre de PL résolu en polarisation linéaire montrant la structure fine du centre isoélectronique NN_2 dans le GaAs, attribué à une paire d'azote de symétrie C_{2v} . La figure est adaptée avec permission de Francoeur *et al.* [82]

2.3.2 Hamiltoniens

Comme nous l'avons vu à la section précédente, les arguments de symétrie permettent de déterminer la polarisation des transitions formant la structure fine d'un centre isoélectronique de symétrie donnée. Toutefois, ils ne nous donnent aucune information sur l'énergie de ces transitions. Nous allons donc développer dans cette section un hamiltonien permettant de modéliser les énergies d'émission d'un centre isoélectronique.

En connaissant le nombre d'états de base pour les électrons (2) et pour les trous (4), il est possible de définir un ensemble d'opérateurs permettant d'exprimer l'hamiltonien du système. Puisque les électrons ne peuvent prendre que deux états, tout hamiltonien agissant sur ceux-ci peut être exprimé à l'aide d'une matrice 2×2 . Or, il n'existe que quatre matrices 2×2 linéairement indépendantes; nous choisissons donc les matrices de Pauli $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ et la matrice identité comme ensemble d'opérateurs agissant sur l'électron. Pour exprimer un hamiltonien à deux dimensions n'agissant que sur les électrons dans la base à 8 dimensions de l'exciton, un produit de Kronecker avec la matrice identité à quatre dimensions doit être réalisé.

Les opérateurs agissant sur les trous sont des matrices 4×4 . Seize matrices linéairement indépendantes seront donc nécessaires pour exprimer un hamiltonien agissant sur les trous. Nous choisissons la matrice identité, les opérateurs de spin J_x, J_y, J_z pour un spin $3/2$ ainsi que des puissances de ces matrices pour définir un ensemble d'opérateurs agissant sur le trou. En effectuant un produit de Kronecker entre un de ces opérateurs et la matrice identité à deux dimensions, un hamiltonien agissant sur les trous est exprimé dans la base des excitons.

Finalement, un hamiltonien d'interaction entre les électrons et les trous peut être exprimé par le produit de Kronecker de deux opérateurs, un agissant sur les électrons et l'autre sur les trous. L'hamiltonien d'interaction est donc exprimé par 64 matrices linéairement indépendantes.

Selon la méthode des invariants, un Hamiltonien doit demeurer inchangé sous toutes les opérations de symétrie du système considéré et sous l'inversion temporelle [88, 90]. Au sens de la théorie des groupes, cela veut dire que chaque terme de l'hamiltonien doit se transformer selon une représentation incluant la représentation infidèle, généralement notée Γ_1 . Or, les représentations de chacune des matrices agissant sur l'électron et le trou de même que les représentations de toutes perturbations (un champ électrique ou magnétique) peuvent être déterminées à l'aide des tables de la théorie des groupes. Un hamiltonien est donc construit dans un groupe ponctuel donné en déterminant la représentation du produit de chaque opérateur avec une perturbation quelconque et en ne conservant que les termes invariants.

En utilisant la méthode des invariants, nous allons déterminer l'hamiltonien des excitons liés à un centre isoélectronique de symétrie C_{2v} . Celui-ci est composé d'un hamiltonien de champ cristallin, lié aux contraintes générées par la présence des impuretés, et d'un hamiltonien d'échange électron-trou.

Champ cristallin

L'hamiltonien de champ cristallin peut être construit en ne prenant que les opérateurs agissant sur l'électron et sur le trou se transformant selon Γ_1 et invariants sous l'inversion temporelle. Or, pour l'électron, seule la matrice identité satisfait ces critères ; le champ cristallin n'est donc exprimé que dans la base des trous.

Les opérateurs agissant sur les trous de représentation Γ_1 en symétrie C_{2v} sont J_x^2, J_y^2 et J_z^2 . L'hamiltonien de champ cristallin s'exprime ainsi

$$H_{CF} = \sum_{i=x,y,z} v_i J_i^2, \quad (2.4)$$

où les v_i sont des coefficients déterminés expérimentalement. Notons que dans les groupes de symétrie D_{2d} et C_{3v} , les axes x et y sont équivalents ; le champ cristallin peut alors être exprimé en prenant $v_x = v_y$.

Interaction d'échange

L'hamiltonien d'échange entre l'électron et le trou fait intervenir de nombreux termes invariants et s'écrit en symétrie C_{2v}

$$\begin{aligned} H_{EX} = \sigma_z & \left(4a_1 J_z + 16a_2 J_z^3 + \frac{8}{\sqrt{3}} a_3 \{J_z, J_x^2 - J_y^2\} \right) \\ & + \sigma_x (4a_4 J_x + 16a_5 J_x^3 + 8a_6 \{J_x, J_y^2 - J_z^3\}) \\ & + \sigma_y (4a_7 J_y + 16a_8 J_y^3 + 8a_9 \{J_y, J_z^2 - J_x^3\}), \end{aligned} \quad (2.5)$$

où les a_i sont des coefficients et $\{J_x, J_y^2 - J_z^3\}$ désigne un anti-commutateur. L'hamiltonien d'échange isotrope comprend les termes linéaires en J alors que l'hamiltonien d'échange anisotrope est composé des termes cubiques. Or, il a été démontré expérimentalement que l'importance des termes anisotropes est faible par rapport aux termes isotropes [91]. Nous utiliserons donc l'hamiltonien simplifié suivant pour décrire l'interaction d'échange

$$H_{EX} = \sum_{i=x,y,z} -a_i \sigma_i J_i, \quad (2.6)$$

où seuls les termes isotropes ont été conservés. Mentionnons que les termes d'échange anisotropes sont généralement considérés pour décrire les excitons dans des nanostructures comme les boîtes quantiques où la dégénérescence entre les trous lourds et les trous légers est levée par d'importantes contraintes [92, 93]. La structure fine d'un tel système est présentée à la figure 2.10. Deux excitons brillants sont séparés par une énergie δ_1 et deux excitons noirs sont séparés par une énergie δ_2 . L'écart moyen en énergie entre les excitons brillants et noirs est de δ_0 .

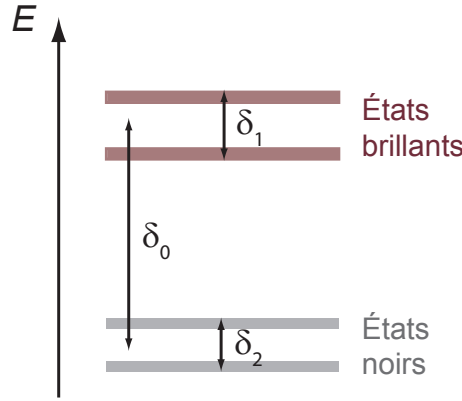


Figure 2.10 Structure fine d'un système où les trous légers sont à beaucoup plus haute énergie que les trous lourds. Deux états sont brillants et séparés par une énergie δ_1 et deux états sont noirs et séparés par une énergie δ_2 . Les états noirs et brillants sont séparés par δ_0 .

Dans un tel système, les excitons sont décrits en considérant indépendamment les trous lourds et les trous légers, c'est-à-dire dans des sous-espaces à quatre dimensions. Dans ce sous-espace, la levée de dégénérescence δ_1 entre les deux états trous lourds qui sont brillants ne peut être décrite que par une interaction d'échange anisotrope. Toutefois, en considérant simultanément les huit états excitoniques, un faible mélange entre les trous lourds et les trous légers est suffisant pour décrire cette levée de dégénérescence : les termes d'échange anisotropes ne sont donc plus nécessaires [88].

Notons par ailleurs que dans les groupes de symétrie C_{3v} et D_{2d} , l'hamiltonien d'échange isotrope est obtenu en posant $a_x = a_y$.

Hamiltonien sous champ magnétique

Déterminons maintenant l'hamiltonien d'interaction d'un exciton avec un champ magnétique appliqué dans une direction arbitraire. Dans le cas de l'électron, l'hamiltonien sous champ magnétique est facilement obtenu par la méthode des invariants et s'écrit

$$H_{Be} = \sum_{i=x,y,z} \mu_B g_i \sigma_i B_i + \gamma_e B^2, \quad (2.7)$$

où μ_B est le magnéton de Bohr et les g_i sont les facteurs g de l'électron, considérés anisotropes dans le cas d'un pseudo-accepteur étant donné la forte localisation de l'électron sur le centre isoélectronique. Le coefficient γ_e est le décalage diamagnétique de l'électron.

L'expansion invariante de l'hamiltonien du trou sous champ magnétique fait intervenir de nombreux paramètres. Or, afin de limiter le nombre de paramètres, nous allons utiliser un hamiltonien simplifié ayant une symétrie T_d , la symétrie du cristal sans centre isoélectronique. Cette approximation permet de décrire de façon satisfaisante l'interaction des excitons dans une boîte quantique avec un champ magnétique [92]. Nous allons également négliger tout terme faisant intervenir des puissances quadratiques de J_i et de B_i simultanément. Il a été démontré que ces termes ont très peu d'influence sur la structure fine des centres isoélectroniques d'azote dans le GaP [91]. L'hamiltonien d'interaction du trou avec le champ magnétique s'écrit donc

$$H_{Bh} = \mu_B \sum_{i=x,y,z} (K J_i + L J_i^3) B_i + \gamma_h B^2, \quad (2.8)$$

où L et K sont les paramètres de Luttinger [90], correspondant respectivement à l'interaction isotrope et anisotrope du trou avec le champ magnétique. Le paramètre γ_h représente le décalage diamagnétique du trou.

L'hamiltonien d'interaction d'un exciton avec un champ magnétique aura finalement la forme suivante

$$H_{BX} = \mu_B \sum_{i=x,y,z} \left[g_i \sigma_i + K J_i + L J_i^3 \right] B_i + \gamma_X B^2, \quad (2.9)$$

où $\gamma_X = \gamma_e + \gamma_h$ est le décalage diamagnétique de l'exciton.

2.3.3 Modélisation d'une paire d'azote dans le GaAs

L'hamiltonien de champ cristallin et les hamiltoniens simplifiés d'échange et d'interaction avec un champ magnétique ont été utilisés pour modéliser la structure fine d'une paire NN_1 dans le GaAs sous champ magnétique [84]. La paire d'azote analysée est dans le plan de l'échantillon et le champ magnétique est appliqué selon la direction z qui coïncide avec l'axe optique du système (le champ est donc en configuration de Faraday). La figure 2.11 présente le spectre d'émission en fonction du champ magnétique : en (a), la lumière est détectée perpendiculairement à la paire d'azote (à 90°) et en (b), parallèlement à la paire (à 0°). Les traits représentent les énergies calculées : les traits blancs sont associés à des états brillants et les traits noirs à des états noirs. Les traits blancs pleins (pointillés) sont associés à des états polarisés selon (perpendiculairement à) la polarisation détectée.

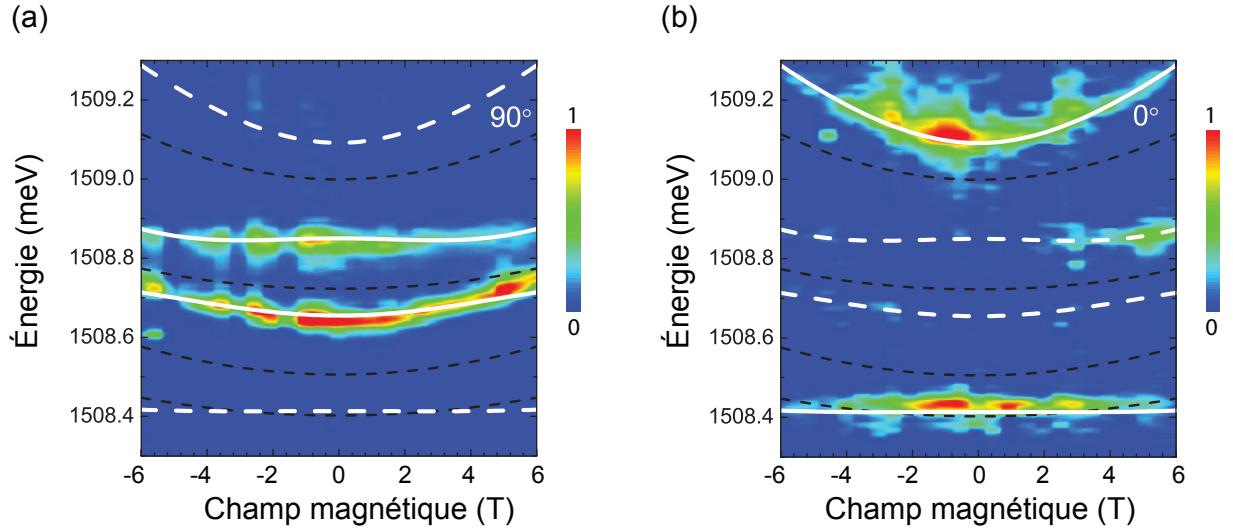


Figure 2.11 Spectre de PL d'une paire d'azote C_{2v} dans le GaAs en fonction du champ magnétique. En (a), le spectre est détecté à 90° et en (b) à 0° de polarisation linéaire. Les traits blancs pleins (tiretés) indiquent les états brillants calculés et émettant dans la polarisation donnée (croisée). Les traits tiretés noirs indiquent la position calculée des états noirs. (Adaptée avec permission de Marcet *et al.* [84])

Les paramètres suivants de champ cristallin et d'échange ont été obtenus :

$$\begin{aligned} v_x &= 96 \text{ } \mu\text{eV}, v_y = 2.8 \text{ } \mu\text{eV}, v_z = -96 \text{ } \mu\text{eV} \\ a_x &= 217 \text{ } \mu\text{eV}, a_y = 161 \text{ } \mu\text{eV}, a_z = 166 \text{ } \mu\text{eV}. \end{aligned}$$

Il est difficile d'évaluer les plages d'incertitude des paramètres étant donné leur nombre et leurs interdépendances. Une analyse de la plage de validité des paramètres a_i a donc été

réalisée en fixant $a = a_x = a_y = a_z$ à $B_z = 0$ T [84]. Il a été trouvé qu'un paramètre variant entre $a = 140 \mu\text{eV}$ et $a = 240 \mu\text{eV}$ reproduisait de façon satisfaisante les données expérimentales. Pour les paramètres de champ cristallin, une analyse similaire a permis de conclure que l'erreur sur les paramètres est de l'ordre de 30%.

Notons que les paramètres de champ cristallin obtenus doivent être interprétés avec prudence. En effet, ils décrivent deux phénomènes physiques distincts : 1) la différence entre les énergies de confinement des trous lourds et des trous légers dû à leurs différentes relations de dispersion et 2) les contraintes induites par la présence de la paire d'azote dans le réseau. Or, il est très difficile de discriminer entre ces deux phénomènes et de donner une interprétation physique aux signes et grandeurs des paramètres obtenus.

Par ailleurs, il pourrait être tentant d'associer les paramètres d'échange à la localisation de l'électron sur la paire d'azote. En effet, l'interaction d'échange dépend du recouvrement entre la fonction d'onde de l'électron et celle du trou. Toutefois, les paramètres obtenus sont à la fois influencés par les fonctions d'onde enveloppe et atomique. Comme, à priori, nous n'avons pas d'information sur la partie radiale de la fonction atomique et sur la fonction enveloppe, il devient difficile d'isoler l'effet de ces deux fonctions sur les paramètres d'échange et d'en tirer des informations utiles.

Il est tout de même possible de faire une constatation générale sur les paramètres calculés : l'interaction d'échange est relativement bien décrite par un seul paramètre et ainsi, par un hamiltonien de symétrie T_d . Toutefois, la structure fine observée correspond bien à la structure fine attendue en symétrie C_{2v} . Ce caractère C_{2v} de la structure fine doit donc provenir essentiellement du champ cristallin, pour lequel les paramètres sont très différents l'un de l'autre. Pour des paires d'azote dans le GaP, des paramètres d'échange près de trois fois plus grands par rapport au GaAs ont été trouvés alors que les paramètres de champ cristallin sont similaires [91]. La structure fine dans ce matériau est donc dominée par l'interaction d'échange, qui ne semble pas être fortement affectée par la brisure de symétrie du cristal induite par la présence d'une paire d'azote. Nous concluons donc que c'est pour cette raison que les travaux ayant tenté d'identifier la symétrie des paires d'azote dans le GaP à partir de leur structure fine n'ont eu que des succès mitigés [79]. Dans le GaAs, le champ cristallin étant beaucoup plus important relativement à l'interaction d'échange, les structures fines observées sont caractéristiques de la symétrie de la paire d'azote.

La modélisation des énergies sous champ magnétique a permis d'extraire les paramètres suivants : $g_z = 0.82$, $K = -0.42$, $L = 0.1$ et $\gamma_X = 1.99 \pm 0.06 \mu\text{eV}/\text{T}^2$. Le décalage diamagnétique peut être directement extrait de l'évolution de l'énergie moyenne des quatre transitions sous champ magnétique et a donc une faible incertitude. Les plages de validité des autres

paramètres sont les suivantes :

$$\begin{aligned} g_z &\in [0, 0.94]; \\ K &\in [-0.4, -0.6]; \\ L &\in [-0.02, 0.18]. \end{aligned}$$

Les paramètres g_z et K dépendent de la localisation des porteurs de charge. Dans le GaAs, g varie de -0.5 pour un électron complètement délocalisé à 2 pour un électron localisé et le facteur K d'un trou délocalisé est de -2 [84, 94]. Les paramètres obtenus indiquent donc que les deux porteurs de charge sont plutôt localisés. Le paramètre L est pour sa part similaire au paramètre obtenu dans le GaP [91].

L'analyse du décalage diamagnétique peut également nous donner des informations sur les fonctions d'onde des électrons et des trous. En effet, sous l'approximation de la masse effective, le décalage diamagnétique de deux particules liées par interaction coulombienne s'exprime [95]

$$\gamma_X = \frac{e^2}{8} \left(\frac{\langle r_e^2 \rangle}{m_e} + \frac{\langle r_h^2 \rangle}{m_h} \right) = \gamma_e + \gamma_h, \quad (2.10)$$

où $\langle r_{e,h}^2 \rangle^{1/2}$ sont les rayons moyens de l'électron et du trou. En prenant un trou avec le rayon de Bohr du GaAs ($r_h = 3.4$ nm) et une masse effective moyenne de $m_h = 0.2 m_0$ et un électron de masse $m_e = 0.08 m_0$, un rayon électronique de 1.6 nm est trouvé. Ce rayon est légèrement supérieur au rayon de 0.6 nm calculé pour un électron lié à une impureté unique d'azote dans le GaAs, ce qui peut être expliqué par la présence de deux impuretés d'azote [74].

Finalement, il est vrai que la modélisation de seulement quatre transitions excitoniques présentée dans cette section fait intervenir un nombre élevé de paramètres. Mentionnons toutefois que la modélisation simultanée des polarisations, générant des contraintes sur les vecteurs propres de l'hamiltonien, et des énergies (sous champ magnétique) restreint suffisamment l'espace de paramètres pour obtenir des résultats satisfaisants avec des plages d'incertitude relativement faibles.

2.4 Configurations de charge

En plus des excitons, les centres isoélectroniques peuvent lier d'autres configurations de charge : des excitons chargés et des biexcitons. Un exciton chargé est une pseudo-particule

composée d'un exciton et d'un porteur de charge supplémentaire : un exciton chargé positivement est composé d'un électron et de deux trous et un exciton chargé négativement est composé de deux électrons et d'un trou. Un biexciton est une pseudo-particule formée de deux excitons liés.

La possibilité de lier plusieurs configurations de charges est illustrée à la figure 2.12 où le spectre d'émission d'une paire de tellure dans le ZnSe est présenté [96]. Trois groupes de transitions sont observés en (a) : l'émission de l'exciton est notée X , le biexciton XX et l'exciton chargé X^* . La figure 2.12 (b) présente l'évolution du spectre de PL dans le temps et confirme que les trois configurations de charge sont liées à la même paire de tellure. En effet, on y remarque une dérive spectrale commune après environ 60 s. Ce type de dérive est fréquemment observé dans ce matériau et est attribué à des charges piégées dans l'environnement des paires [96].

Les paires de tellure dans le ZnSe sont de symétrie C_{2v} [68, 87]. Les polarisations des transitions excitoniques à la figure 2.12 (a) sont orientées selon 0° et 90° , tel qu'attendu pour cette symétrie. Toutefois, la structure fine de l'exciton n'est composée que de deux transitions. Ceci s'explique par le fait que la croissance de ZnSe a été réalisée sur un substrat de GaAs, ce qui introduit des contraintes dans l'échantillon à cause de la différence des paramètres de maille. Ainsi, les transitions trous légers sont absentes du spectre d'émission, car les contraintes poussent les trous légers à plus haute énergie (environ 12 meV). Les états excitoniques sont donc bien décrits par la figure 2.10.

Pour confirmer que les raies XX proviennent bien d'un biexciton, l'intensité de PL en fonction de la puissance d'excitation est présentée à la figure 2.12 (c). L'intensité I provenant des trois pseudo-particules suit une loi de puissance en fonction de la puissance d'excitation P ($I \propto P^k$) dont les exposants caractéristiques sont $k_X = 0.6$, $k_{X^*} = 0.7$ et $k_{XX} = 1.2$. Or, un facteur 2 est attendu entre les exposants k_X et k_{XX} : si la probabilité de lier un exciton à la paire de tellure pendant un intervalle de temps Δt est proportionnelle à P^{k_X} , la probabilité de lier deux excitons devrait être de P^{2k_X} , d'où $2k_X = k_{XX}$. Dans le cas de l'exciton chargé, on suppose qu'une charge résiduelle demeure liée à la paire de tellure après l'émission d'un photon : un seul exciton doit être lié, ce qui implique que $k_X \simeq k_{X^*}$. La raison pour laquelle $k_X \neq 1$ n'est toutefois pas bien comprise. Une des hypothèses suggérée est que l'augmentation de la puissance ouvre des canaux de relaxation non-radiative [96].

Nous constatons également à la figure 2.12 (a) que les polarisations du biexciton sont renversées par rapport à l'exciton, c'est-à-dire que la transition à plus faible énergie est polarisée à 0° plutôt qu'à 90° . Ceci peut être expliqué en analysant la symétrie du biexciton. Par le principe d'exclusion de Pauli, son état fondamental est composé de deux singulets (un d'élec-

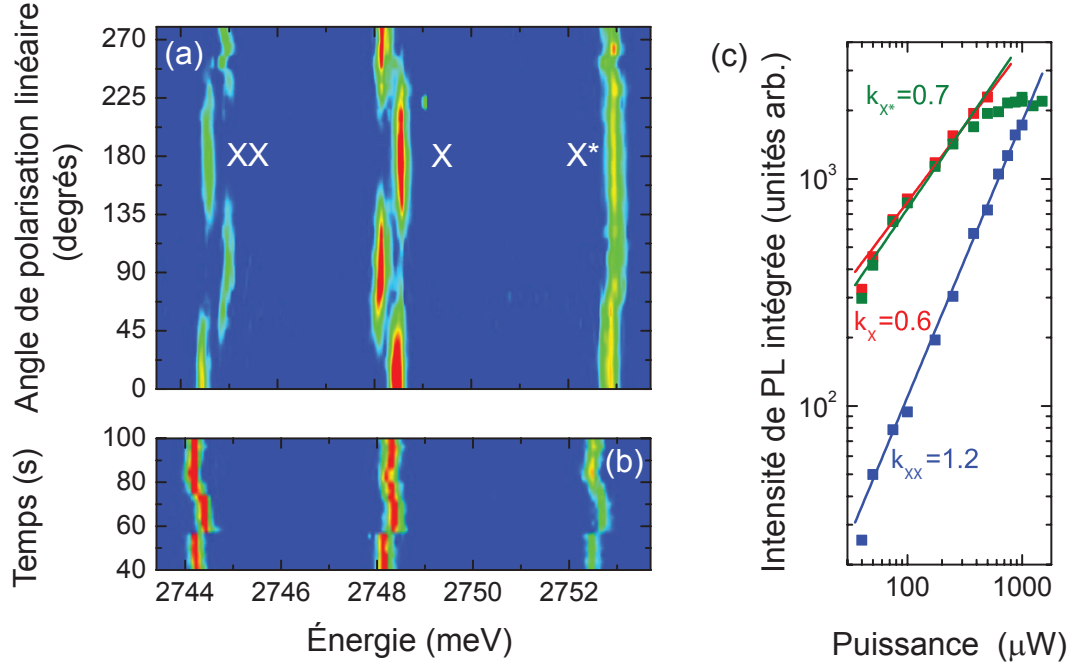


Figure 2.12 (a) Spectre de PL en fonction de la polarisation d'une paire de tellure dans le ZnSe pour lequel l'émission de l'exciton (X), du biexciton (XX) et de l'exciton chargé (X^*) sont visibles. (b) Évolution temporelle du spectre montrant une dérive spectrale commune aux trois transitions. (c) Intensité de PL intégrée pour chaque configuration de charge en fonction de la puissance. Les intensités croissent selon une loi de puissance ayant les exposants k donnés. (Adaptée avec permission de Marcet *et al.* [96])

trons et un de trous). Le moment cinétique net est donc nul et la représentation du biexciton est Γ_1 . Puisque la représentation du biexciton est la même que celle du niveau fondamental, les polarisations des deux photons émis lors d'une cascade biexcitonique, illustrées à la figure 2.13, doivent être identiques (dans la mesure où les polarisations sont linéaires). En observant la figure 2.13, il devient clair que le photon de basse énergie provenant du biexciton a une polarisation perpendiculaire au photon de basse énergie émis par l'exciton.

La polarisation de la transition X^* permet de l'attribuer à un exciton chargé. En effet, les trous (électrons) formant un exciton chargé positivement (négativement) sont dans un état singulet et ont donc un moment cinétique total nul. Ainsi, l'interaction d'échange, responsable de la levée de dégénérescence entre les transitions polarisées selon x et selon y en symétrie C_{2v} , est supprimée pour un exciton chargé. Une raie d'émission non-polarisée est donc caractéristique d'un exciton chargé. Des raies non-polarisées sont possibles pour des paires de symétrie C_{3v} ou D_{2d} , mais étant donné que la raie X^* provient de la même paire que les transitions X et XX , elle ne peut être attribuée qu'à un exciton chargé.

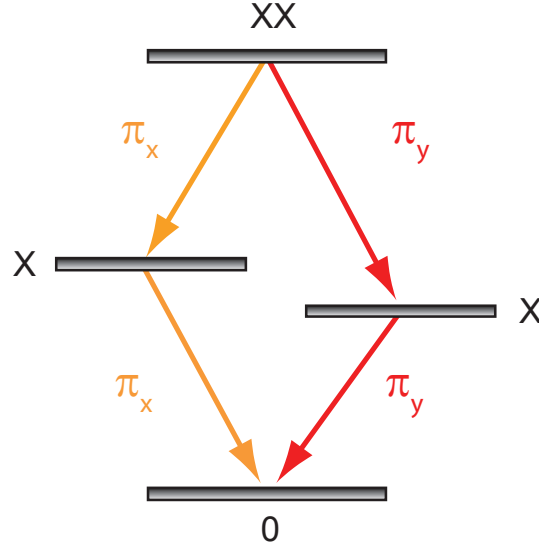


Figure 2.13 Schématisation des niveaux d'énergie impliqués lors d'une cascade biexcitonique en symétrie C_{2v} , montrant que les polarisations des deux photons émis sont parallèles et que les polarisations des transitions provenant du biexciton sont inversées par rapport aux transitions provenant de l'exciton.

Finalement, mentionnons que par l'analyse du décalage diamagnétique des transitions provenant de l'exciton chargé, il a été conclu que celui-ci est chargé positivement. Le décalage diamagnétique d'une transition peut être exprimé comme la différence entre le décalage diamagnétique du niveau initial et le décalage diamagnétique du niveau final, $\gamma = \gamma_i - \gamma_f$. Deux cas sont envisagés [97] :

1. L'exciton est chargé positivement. Dans ce cas, après émission d'un photon, un trou demeure lié à la paire de tellure. Le décalage diamagnétique du niveau initial est celui d'un exciton additionné à celui d'un trou $\gamma_i = \gamma_X + \gamma_h$ et le décalage diamagnétique final est celui d'un trou $\gamma_f = \gamma_h$. Ainsi, $\gamma \simeq \gamma_X$;
2. L'exciton est chargé négativement. Dans ce cas, le décalage diamagnétique initial est celui d'un exciton additionné à celui d'un électron localisé $\gamma_i = \gamma_x + \gamma_e$ et le décalage diamagnétique final est celui d'un électron délocalisé $\gamma_f = \gamma_{e \text{ dél}}$, puisque la paire de tellure est un pseudo-donneur. Or, puisque $\gamma_{e \text{ dél}} \gg \gamma_e$, le décalage diamagnétique pour un exciton chargé négativement est beaucoup plus faible que le décalage diamagnétique d'un exciton neutre et pourrait même être négatif [97].

Le décalage diamagnétique mesuré pour l'exciton est de $\gamma_X = 0.9 \pm 0.2$ et celui de l'exciton chargé est de $\gamma_{X^*} = 1.3 \pm 0.2$ [96]. La similitude entre les deux valeurs confirme que l'exciton est chargé positivement. Notons finalement que dans le cas d'un pseudo-accepteur, les

deux cas seraient inversés : un exciton chargé négativement aurait un décalage diamagnétique similaire à l'exciton neutre, alors qu'un exciton chargé positivement aurait un décalage diamagnétique inférieur.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons défini les centres isoélectroniques et leur mécanisme de liaison d'excitons. Puis, nous avons démontré que les paires d'impuretés d'azote dans le GaP et dans le GaAs forment une série de centres isoélectroniques dont l'énergie d'émission dépend de la séparation entre les deux atomes formant la paire. Les variations importantes de l'énergie d'émission d'une configuration de paire à l'autre permettent l'étude d'une configuration unique ayant un élargissement inhomogène aussi faible que 25 GHz (ou $100 \mu\text{eV}$). Nous avons également développé un modèle théorique basé sur des arguments de symétrie permettant de prédire et de modéliser la structure fine des centres isoélectroniques. Finalement, nous avons démontré que les paires de tellure dans le ZnSe lient des excitons chargés et des biexcitons et nous avons établi la signature caractéristique de ces deux configurations de charge.

Ainsi, les centres isoélectroniques sont des nanostructures homogènes, de symétrie parfaitement définie par le réseau cristallin, pouvant lier des électrons, des trous lourds et des trous légers de façon très localisée, de même que des excitons, des excitons chargés et des biexcitons. Au prochain chapitre, nous allons démontrer qu'en plus de ces caractéristiques remarquables, une autre propriété clé s'ajoute : les centres isoélectroniques présentent un fort couplage avec la lumière. Pour toutes ces raisons, les centres isoélectroniques pourraient s'avérer une plateforme avantageuse par rapport aux boîtes quantiques et centres NV dans le diamant pour la réalisation de réseaux et répéteurs quantiques.

CHAPITRE 3 CONTRÔLE COHÉRENT D'UN QUBIT EXCITONIQUE

La possibilité de contrôler complètement l'unité de base de l'information quantique, le qubit, est une condition nécessaire à la réalisation de réseaux quantiques. Or, pour qu'un qubit soit contrôlable optiquement, il est nécessaire que les deux niveaux d'énergie le formant soient liés, directement ou indirectement, par une transition optique. Puisque les centres isoélectroniques lient différentes configurations de charge, il est possible d'y définir de plusieurs façons différentes un qubit. La configuration de charge la plus simple à utiliser à cet effet est l'exciton.

Au fil des ans, plusieurs démonstrations de contrôle cohérent de qubits formés par des excitons ont été réalisées dans les boîtes quantiques [36–38, 40, 42, 98, 99]. Dans l'état fondamental d'un tel qubit, aucun exciton n'est lié à la boîte quantique alors que dans l'état excité, un exciton est lié. L'initialisation du qubit dans un tel système est triviale : tant qu'il n'y a pas d'excitation optique, le système demeure dans l'état fondamental. Le contrôle cohérent se fait par des impulsions laser et la lecture par la mesure de la fluorescence de l'exciton.

Dans ce chapitre, nous allons montrer qu'il est également possible d'initialiser, de contrôler et de lire l'état quantique d'un qubit excitonique lié à une paire d'impuretés d'azote dans le GaAs. Nous allons d'abord décrire de façon théorique l'interaction d'un système à deux niveaux avec un champ résonant et comment il est possible de contrôler l'état du système en utilisant des impulsions laser. Puis, nous allons décrire l'expérience ayant permis de démontrer le contrôle complet d'un qubit excitonique. Nous démontrerons que les excitons liés aux centres isoélectroniques sont fortement couplés avec la lumière. Cette propriété, combinée avec une grande homogénéité optique, positionne les centres isoélectroniques comme une intéressante plateforme alternative aux boîtes quantiques pour la réalisation de technologies de l'information quantique.

3.1 Problème de Rabi

Dans cette section, nous développerons un modèle théorique semi-classique de l'interaction d'un système quantique à deux niveaux séparés par une énergie $\hbar\omega_0$ et décrit par la fonction d'onde $|\Psi\rangle = c_0 |0\rangle + c_X |X\rangle$ avec un champ résonant.

3.1.1 Hamiltonien

L'hamiltonien du système sous l'influence d'un champ électrique classique \vec{E} s'écrit de la façon suivante

$$H_S = \hbar\omega_0 |X\rangle \langle X| - \vec{d} \cdot \vec{E}, \quad (3.1)$$

où \vec{d} représente le moment dipolaire électrique couplant les deux niveaux. Puisque $\langle 0|\vec{d}|0\rangle = \langle X|\vec{d}|X\rangle = 0$, $\langle X|\vec{d}|0\rangle = \vec{\mu}$ et $\langle 0|\vec{d}|X\rangle = \vec{\mu}^*$, le moment dipolaire peut s'écrire

$$\vec{d} = \vec{\mu} |X\rangle \langle 0| + \vec{\mu}^* |0\rangle \langle X|. \quad (3.2)$$

Le champ électrique d'amplitude et de polarisation \vec{E}_0 oscille à la fréquence du laser ω_L et s'exprime de la façon suivante

$$\vec{E} = \frac{1}{2}(\vec{E}_0 e^{-i\omega_L t} + \vec{E}_0^* e^{i\omega_L t}). \quad (3.3)$$

Cette expression du champ électrique est obtenue en faisant la somme de deux composantes orthogonales ayant un déphasage de $\pi/2$; elle permet donc d'exprimer un champ électrique ayant une polarisation elliptique arbitraire. Le champ électrique est polarisé linéairement si $\vec{E}_0 = \vec{E}_0^*$.

La fréquence de Rabi, $\Omega = \frac{\vec{\mu} \cdot \vec{E}_0}{\hbar}$, dépend de l'importance du couplage entre l'onde oscillant à la fréquence ω_L et le système à deux niveaux. La fréquence $\tilde{\Omega} = \frac{\vec{\mu} \cdot \vec{E}_0^*}{\hbar}$ détermine l'importance du couplage entre l'onde oscillant à la fréquence $-\omega_L$ et le système à deux niveaux. En utilisant ces définitions, le terme de couplage devient

$$\vec{d} \cdot \vec{E} = \frac{\hbar}{2} (\Omega e^{-i\omega_L t} + \tilde{\Omega} e^{i\omega_L t}) |X\rangle \langle 0| + \frac{\hbar}{2} (\tilde{\Omega}^* e^{-i\omega_L t} + \Omega^* e^{i\omega_L t}) |0\rangle \langle X|. \quad (3.4)$$

Approximation du référentiel tournant

Il est très utile de réécrire l'hamiltonien du système dans la représentation d'interaction de la mécanique quantique. Cette représentation est un hybride entre la représentation de Schrödinger, où l'évolution temporelle du système est comprise dans la fonction d'onde, et la représentation d'Heisenberg, où l'évolution temporelle est exprimée dans l'hamiltonien du système. Dans la représentation d'interaction, une partie de l'évolution temporelle est contenue dans l'hamiltonien alors que la partie d'intérêt est contenue dans la fonction d'onde. Dans le cas présent, nous choisissons de faire évoluer l'hamiltonien à la fréquence ω_L et de n'inclure dans la fonction d'onde que l'évolution à la fréquence de Rabi. Cela revient à décrire l'évolution du système dans un référentiel tournant à la fréquence ω_L . Pour passer dans la

représentation d'interaction (ou dans le référentiel tournant), nous définissons

$$\begin{aligned} H_0 &= \hbar\omega_L |X\rangle \langle X|, \\ H_1 &= \hbar\Delta |X\rangle \langle X| - \vec{d} \cdot \vec{E}, \\ H_S &= H_0 + H_1, \end{aligned} \tag{3.5}$$

où $\Delta = \omega_0 - \omega_L$. L'hamiltonien d'interaction s'écrit $H_I = UH_1U^\dagger$, où $U = e^{iH_0t/\hbar} = e^{i\omega_L t |X\rangle \langle X|}$ est le propagateur. En effectuant un développement de Taylor, le propagateur peut être réécrit

$$\begin{aligned} U &= e^{i\omega_L t |X\rangle \langle X|} \\ &= \hat{1} + i\omega_L t |X\rangle \langle X| + \frac{(i\omega_L t)^2}{2} |X\rangle \langle X| |X\rangle \langle X| + \dots \\ &= |0\rangle \langle 0| + e^{i\omega_L t} |X\rangle \langle X| \end{aligned} \tag{3.6}$$

où $\hat{1} = |0\rangle \langle 0| + |X\rangle \langle X|$ est l'opérateur identité. Il est alors possible d'écrire l'hamiltonien d'interaction sous forme matricielle, dans la base $\{|0\rangle, |X\rangle\}$ de la façon suivante :

$$H_I = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\tilde{\Omega}e^{-2i\omega_L t} - \Omega^* \\ -\Omega - \tilde{\Omega}^*e^{-2i\omega_L t} & 2\Delta \end{pmatrix}. \tag{3.7}$$

L'approximation du référentiel tournant consiste à négliger les termes oscillant à la fréquence $2\omega_L$ à l'équation 3.7. En effet, ces termes oscillent trop rapidement pour être observés et leur contribution moyenne sur l'interaction dipolaire est nulle. Ainsi, l'hamiltonien d'interaction se réduit à :

$$H_I = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\Omega^* \\ -\Omega & 2\Delta \end{pmatrix}. \tag{3.8}$$

Cet hamiltonien représente le couplage induit par le laser entre les deux niveaux. À partir de celui-ci, il est possible d'obtenir la probabilité de trouver le système dans l'état excité ou fondamental en fonction du temps.

3.1.2 Fonction d'onde

La fonction d'onde Ψ_I du système à deux niveaux dans la représentation d'interaction peut être obtenue en résolvant analytiquement l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_I}{\partial t} = H_I \Psi_I. \quad (3.9)$$

Si le système est initialement dans l'état fondamental, les probabilités de le trouver respectivement dans les états $|0\rangle$ et $|X\rangle$ après un temps t sont :

$$\begin{aligned} |c_0|^2 &= \cos^2\left(\frac{\omega_r t}{2}\right) + \frac{\Delta^2}{\omega_r^2} \sin^2\left(\frac{\omega_r t}{2}\right) \\ |c_X|^2 &= \frac{|\Omega|^2}{\omega_r^2} \sin^2\left(\frac{\omega_r t}{2}\right), \end{aligned} \quad (3.10)$$

où $\omega_r = \sqrt{\Delta^2 + |\Omega|^2}$ est la fréquence de Rabi généralisée, fréquence à laquelle le système oscille entre les deux niveaux. Plus le décalage est grand, plus la fréquence de Rabi généralisée est grande ; toutefois, plus la probabilité de trouver le système dans l'état excité est faible. En effet, il n'est possible de placer le système dans l'état $\Psi_I = |X\rangle$ que pour une excitation parfaitement résonante ($\Delta = 0$). La figure 3.1 montre les trajectoires de l'état quantique sur la sphère de Bloch pour un système excité avec un décalage spectral positif ($\Delta/\Omega = 0.05$) en bleu, un décalage nul en noir et un décalage négatif en rouge ($\Delta/\Omega = -0.05$). On y remarque que lorsque le décalage spectral est nul, le système fait une rotation sur la sphère de Bloch autour de l'axe x . Un décalage spectral de l'excitation ajoute une composante en z à l'axe de rotation du système.

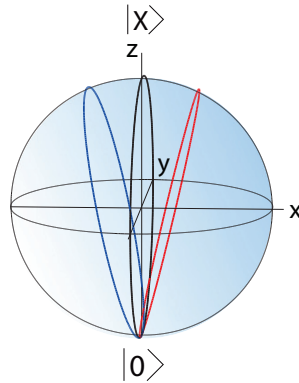


Figure 3.1 Trajectoires sur la sphère de Bloch d'un système à deux niveaux lorsque $\Delta/\Omega = -0.05$ en rouge, $\Delta/\Omega = 0$ en noir et $\Delta/\Omega = 0.05$ en bleu. Les trajectoires sont présentées dans un référentiel tournant à la fréquence ω_L .

3.1.3 Formalisme de la matrice densité

Le formalisme de la matrice densité est équivalent au formalisme présenté à la section précédente pour décrire l'évolution temporelle d'un système quantique à deux niveaux. Toutefois, il est particulièrement adapté pour décrire des phénomènes de déphasage de l'état quantique, c'est-à-dire des phénomènes limitant le temps de cohérence du système. En effet, dans ce cas, il est nécessaire de faire intervenir des états mixtes dans la description du système, ce que le vecteur d'état Ψ_I ne permet pas de faire. Définissons l'opérateur densité $\hat{\rho}$

$$\hat{\rho} = |\Psi(t)\rangle \langle \Psi(t)|. \quad (3.11)$$

Sous forme matricielle, cet opérateur devient la matrice densité

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} c_0(t)c_0^*(t) & c_0(t)c_X^*(t) \\ c_X(t)c_0^*(t) & c_X(t)c_X^*(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{00}(t) & \rho_{0X}(t) \\ \rho_{X0}(t) & \rho_{XX}(t) \end{pmatrix}. \quad (3.12)$$

Les termes diagonaux de la matrice densité représentent les populations des deux niveaux alors que les termes hors-diagonaux représentent les cohérences. Notons que la matrice densité est hermitienne et sa trace est égale à 1. L'équation de Liouville-Von Neuman décrit l'évolution temporelle unitaire de la matrice densité

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \hat{H}]. \quad (3.13)$$

De façon générale, pour traiter l'interaction d'un système à deux niveaux avec son environnement, un terme dissipatif \mathcal{D} est ajouté à l'équation 3.13

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \hat{H}] + \mathcal{D}. \quad (3.14)$$

Or, il est possible d'écrire le dissipateur phénoménologiquement en introduisant le temps $T_1 = 1/\Gamma_1$, temps de vie des populations et le temps $T_2^* = 1/\Gamma_2^*$, le temps de cohérence

$$\mathcal{D} = \begin{pmatrix} \Gamma_1 \rho_{XX} & -\Gamma_2^* \rho_{0X} \\ -\Gamma_2^* \rho_{X0} & -\Gamma_1 \rho_{XX} \end{pmatrix}. \quad (3.15)$$

Si le seul mécanisme de dissipation est l'émission spontanée de l'exciton, $T_2^* = 2T_1$. Toutefois, cette limite théorique est rarement atteinte. Nous verrons à la section 3.4.3 que les mécanismes de déphasage peuvent être plus compliqués et décrits par un dissipateur approprié.

3.2 Excitation pulsée

Nous allons maintenant analyser l'effet d'un laser pulsé sur le système à deux niveaux. Il est possible de trouver une solution analytique à l'équation 3.9 lorsque $\Delta = 0$, c'est-à-dire lorsque la fréquence centrale de l'impulsion est de ω_0 . Pour ce faire, définissons l'aire de l'impulsion Θ en fonction de la fréquence de Rabi dépendante du temps $\Omega(t)$

$$\Theta = \int_{-\infty}^t \Omega(s) ds. \quad (3.16)$$

La probabilité de trouver le système à deux niveaux dans l'état $|X\rangle$, s'il est initialement dans l'état $|0\rangle$, est alors [100]

$$|c_X|^2 = \sin^2 \left(\frac{\Theta}{2} \right). \quad (3.17)$$

Ce résultat est valide pour toute impulsion limitée par la transformée de Fourier, peu importe sa forme et sa durée.

3.2.1 Rotations de Rabi

L'effet d'une impulsion résonante peut être représenté par une rotation d'un angle $\theta = \Theta(t \rightarrow \infty)$ autour de l'axe x sur la sphère de Bloch. Ainsi, tel qu'illustré à la figure 3.2, une impulsion $\pi/2$ (dont l'aire est de $\pi/2$) génère un état quantique dans le plan équatorial de la sphère, une impulsion π crée l'état $|X\rangle$ et une impulsion 2π crée l'état $|0\rangle$ suite à une rotation complète autour de x .

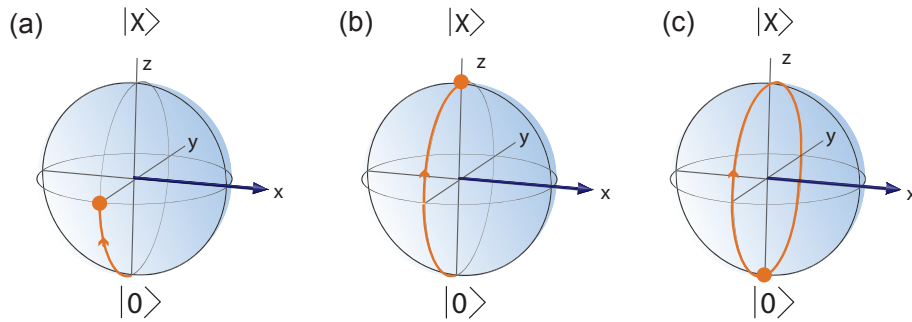


Figure 3.2 Représentation sur la sphère de Bloch de l'effet d'une impulsion (a) $\pi/2$, (b) π et (c) 2π sur un système à deux niveaux

Dans le cas particulier d'une impulsion gaussienne d'amplitude E_0 et de pleine largeur à mi-hauteur τ_p , l'aire de l'impulsion s'écrit

$$\Theta(t \rightarrow \infty) = \frac{\mu E_0 \tau_p}{2\hbar} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}}. \quad (3.18)$$

Ainsi, en faisant varier la durée de l'impulsion ou alternativement sa puissance, ce qui est beaucoup plus facile expérimentalement, il est possible de contrôler l'état quantique final du système à deux niveaux.

Par ailleurs, pour un laser ayant un taux de répétition de $1/\tau_R$ et émettant une puissance moyenne \bar{P} , il est possible de réécrire l'expression précédente de la façon suivante

$$\Theta(t \rightarrow \infty) = \sqrt{\frac{\mu^2 \tau_p \tau_R \bar{P}}{cn \varepsilon_0 \hbar^2 S} \left(\frac{2\pi}{\ln 2} \right)^{1/2}}, \quad (3.19)$$

où S est l'aire du faisceau laser, n l'indice de réfraction du matériau étudié, c la vitesse de la lumière et ε_0 la permittivité du vide. Or, l'intensité de la fluorescence de l'état $|X\rangle$ est proportionnelle à $|c_X|^2 = \sin^2\left(\frac{\Theta(t \rightarrow \infty)}{2}\right)$. Ainsi, en mesurant cette intensité en fonction de la puissance d'excitation, il est possible d'extraire le moment dipolaire μ de l'exciton.

3.2.2 Interférence de Ramsey

Les rotations de Rabi ne permettent une rotation de l'état quantique d'un exciton qu'autour d'un seul axe (x) sur la sphère de Bloch. Or, afin de réaliser un contrôle complet de cet état, il est nécessaire d'effectuer une rotation autour d'un second axe. Cette rotation peut être démontrée par une mesure de franges d'interférence de Ramsey.

Lors d'une telle expérience, deux impulsions $\pi/2$ séparées par un délai τ excitent en résonance l'exciton, tel qu'illustré à la figure 3.3 (a). La première impulsion génère une rotation de $\pi/2$ sur la sphère de Bloch autour de l'axe R_1 , c'est-à-dire l'axe x , tel que montré à la figure 3.3 (b). L'état excitonique est alors dans le plan équatorial de la sphère. Pendant le délai τ , l'exciton accumule une phase $\phi = \omega_0 \tau$ entre ses composantes en $|0\rangle$ et en $|X\rangle$. Cette phase peut être représentée par une rotation d'un angle ϕ dans le plan équatorial de la sphère de Bloch. Alternativement, dans un référentiel tournant à la fréquence ω_0 , l'état quantique demeure fixe dans le temps, mais la rotation créée par la seconde impulsion se fait autour d'un axe R_2 séparé d'un angle ϕ de l'axe R_1 , tel qu'illustré à la figure 3.3 (b).

Ainsi, lorsque les deux impulsions sont en phase ($\phi = 2\pi m$, où m est entier), il y a interférence constructive entre l'état quantique généré par la première impulsion et la seconde impulsion. Lorsque la phase est de $n\pi$ (n entier), il y a interférence destructive. L'interférence de Ramsey se manifeste donc par une variation sinusoïdale de l'intensité d'émission de l'état $|X\rangle$ en fonction du délai τ .

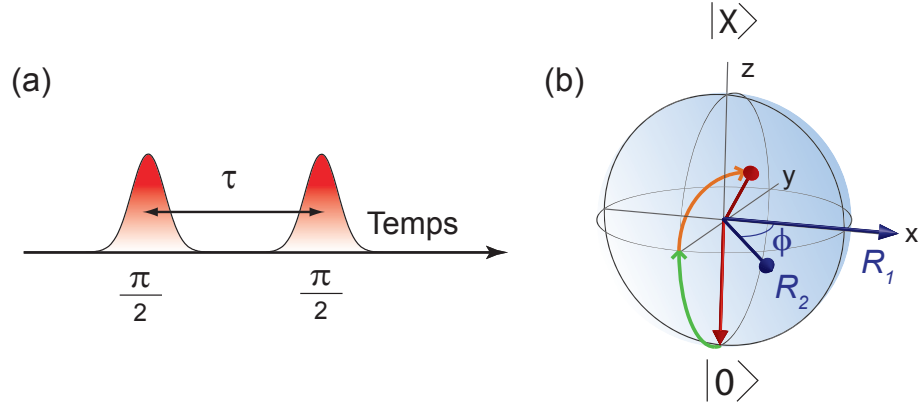


Figure 3.3 (a) Séquence d'impulsions lors d'une expérience d'interférence de Ramsey. Deux impulsions $\pi/2$ sont séparées par un délai τ . (b) Représentation sur la sphère de Bloch de l'évolution de l'état suite aux deux impulsions. La première impulsion crée une rotation de $\pi/2$ autour de l'axe R_1 (flèche verte). La seconde impulsion provoque une rotation de $\pi/2$ autour de l'axe R_2 (flèche orange). Adaptée avec permission de [101]

3.3 Méthodologie expérimentale

Décrivons maintenant la méthodologie ayant permis de démontrer le contrôle cohérent et complet d'un qubit excitonique lié à une paire d'azote dans le GaAs.

3.3.1 Échantillon étudié

Les centres isoélectroniques d'azote ont été formés en introduisant de l'azote lors d'une croissance de GaAs par épitaxie par jet moléculaires. La figure 3.4 présente schématiquement l'échantillon en question. Un puits quantique a été formé en faisant croître une couche de GaAs entre deux couches de $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ selon la direction [001]. Le puits quantique permet d'exciter uniquement la région comprenant des centres isoélectroniques étant donné que la bande interdite du AlGaAs est plus élevée que celle du GaAs. De plus, la couche de AlGaAs est transparente aux photons émis par les centres isoélectroniques, ce qui diminue la probabilité de réabsorption. La couche centrale de GaAs est composée d'une couche dopée à l'azote d'une largeur de 25 nm comprise entre deux couches tampon de 5 nm d'épaisseur. Les couches tampon permettent d'éviter que les centres isoélectroniques soient perturbés par les interfaces avec les couches d'AlGaAs et permettent d'éviter la formation d'AlN. Une couche finale de GaAs recouvre l'échantillon afin d'éviter l'oxydation de l'aluminium, ce qui dégraderait les propriétés optiques de l'échantillon.

La concentration d'azote dans la couche de GaAs:N a été estimée à $3 \cdot 10^5 \mu\text{m}^{-3}$ par des mesures de spectroscopie de masse à ionisation secondaire (SIMS) [82]. Ceci correspond à une densité



Figure 3.4 Schéma de l'échantillon étudié. Un puits quantique est créé par la présence de deux couches de $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$. La couche d'intérêt de GaAs:N a une largeur de 25 nm et est comprise entre deux couches tampon de GaAs de 5 nm d'épaisseur.

de paires d'azote de $0.6 \mu\text{m}^{-2}$, permettant la résolution optique de paires uniques.

Notons finalement que l'échantillon a été cru à une basse température pour introduire délibérément des défauts. Ceci crée un élargissement inhomogène d'environ 1 meV facilitant la résolution des paires d'azotes. Des élargissements inhomogène de $100 \mu\text{eV}$, mesurés en macro-PL, ont été obtenus par Karaïskaj *et al.* sur des échantillons ayant une concentration d'azote similaire et crus à des températures plus élevées [83].

3.3.2 Choix du système

Les rotations de Rabi et l'interférence de Ramsey ont été mesurées sur des paires d'azote de symétrie C_{2v} en configuration NN_1 ne présentant que deux transitions polarisées. Le spectre de photoluminescence résolue en polarisation d'une telle paire est présenté à la figure 3.5. L'absence de deux transitions est attribuée à des contraintes locales séparant les trous lourds et les trous légers. Des contraintes en compression auraient pour effet de pousser les trous légers à haute énergie et les trous lourds à basse énergie, de façon similaire aux paires de tellure dans le ZnSe . Des contraintes en tension auraient l'effet contraire. Nous supposons que les deux transitions observées à la figure 3.5 sont des transitions trous lourds et que les contraintes sont en compression. Ceci est basé sur le fait que toutes les paires observées pour lesquelles il manque des transitions ne présentent que deux transitions. Or, une paire C_{2v} hors plan pour laquelle les trous légers sont à beaucoup plus basse énergie que les trous lourds devrait présenter trois transitions polarisées. Les contraintes pourraient provenir, par exemple, de dislocations dans la couche de GaAs , qui a été crue à basse température.

Une paire ne présentant que deux transitions a été choisie afin de maximiser l'intensité d'émission. En effet, dans ce cas, l'intensité provenant d'une raie devrait être deux fois plus

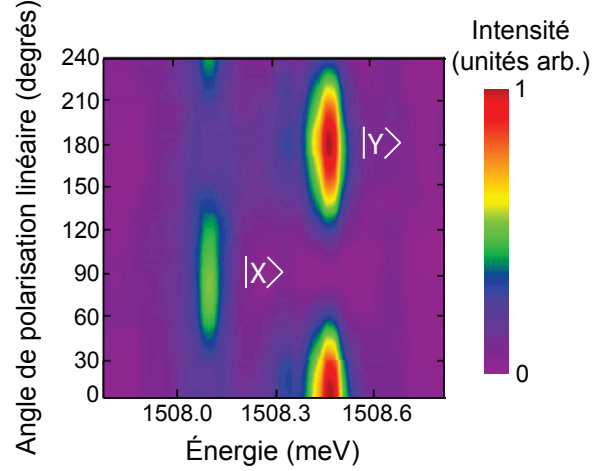


Figure 3.5 Photoluminescence résolue en polarisation d'une paire C_{2v} ne présentant que deux transitions, $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Adaptée avec permission de [101].

élevée puisqu'il y a deux fois moins de canaux permettant la recombinaison radiative de l'exciton. Notons qu'il n'y a pas de raison de croire que les résultats obtenus dans les sections subséquentes ne soient pas reproductibles pour des paires présentant 4 transitions.

3.3.3 Lecture du qubit

La lecture du qubit peut se faire en mesurant l'intensité de la fluorescence à la fréquence ω_0 . Cette mesure peut être interprétée comme la projection de l'état du qubit sur le niveau $|X\rangle$. Or, mesurer la fluorescence de l'état $|X\rangle$ représente un grand défi expérimental. En effet, il est difficile de discriminer la très intense impulsion laser excitant le système de la fluorescence, plus faible en intensité de plusieurs ordres de grandeur.

Deux stratégies sont utilisées conjointement pour rejeter le bruit laser et mesurer le signal de fluorescence : 1) une discrimination en polarisation et 2) une discrimination temporelle.

Discrimination en polarisation

La méthode utilisée pour lire l'état du qubit est illustrée à la figure 3.6. Une impulsion laser polarisée selon x permet de créer un état superposé entre $|0\rangle$ et $|X\rangle$. Puis, l'exciton peut être transféré de l'état $|X\rangle$ à l'état $|Y\rangle$ sur une échelle de temps $1/\gamma_{xy}$. Ceci est possible car le temps caractéristique du transfert est comparable au temps d'émission spontanée [102]. Les mécanismes permettant ce transfert, impliquant l'état polarisé en z et l'état noir représentés à la figure 3.6, seront décrits à la section 3.4. La population créée dans l'état $|Y\rangle$ est directement proportionnelle à la population de l'état $|X\rangle$. Ainsi, mesurer l'intensité de la fluorescence de

l'état $|Y\rangle$ permet la lecture du qubit en le projetant sur $|X\rangle$. Puisque l'émission de $|Y\rangle$ se fait dans une polarisation croisée à celle du laser, près de 4 ordres de grandeur de bruit laser sont rejetés en polarisation.

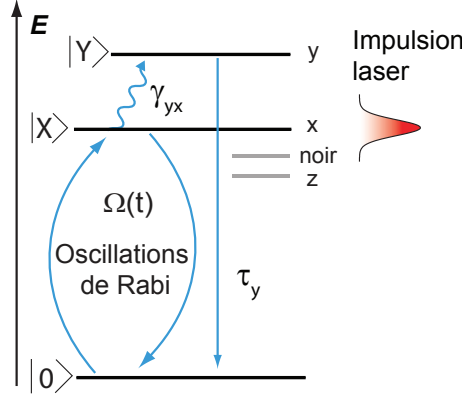


Figure 3.6 Méthode de lecture du qubit. Un laser résonant crée un état quantique en superposition entre $|0\rangle$ et $|X\rangle$. L'état est lu en mesurant la fluorescence de l'état $|Y\rangle$, qui provient d'un transfert de l'exciton de $|X\rangle$ à $|Y\rangle$ à un taux γ_{yx} . Le temps de vie de la fluorescence de l'état $|Y\rangle$ est τ_y . Deux autres états, un exciton noir et un état polarisé en z , qui ne sont pas accessibles en PL, sont représentés. Adaptée avec permission de [101]

Discrimination temporelle

Si le temps de vie τ_y de la luminescence défini à la figure 3.6 est suffisamment long, il est également possible de rejeter temporellement l'impulsion laser. Or, des mesures hors-résonance ont montré que les paires d'azote dans le GaAs ont des temps de vie de l'ordre de 5 ns [102]. La discrimination temporelle peut donc être réalisée en utilisant un détecteur pouvant être ouvert de façon ultra-rapide (en quelques centaines de picosecondes). Le détecteur utilisé est une diode avalanche à photons uniques ayant un temps d'ouverture inférieur à 200 ps [103]. Il est ainsi possible de maintenir le détecteur éteint à l'arrivée de l'impulsion laser, puis de l'ouvrir pour mesurer le signal de fluorescence sur un temps τ_y , tel qu'illustré à la figure 3.7 (a).

Le délai entre l'arrivée de l'impulsion laser et l'ouverture du détecteur est déterminé par la réponse de la photodiode à une impulsion. La figure 3.7 (b) montre une réponse ayant une pleine largeur à mi-hauteur de 60 ps pour le détecteur utilisé. Environ 200 ps après l'impulsion laser, la réponse du détecteur décroît selon une exponentielle ayant un temps caractéristique inférieur à 60 ps. Ce temps caractéristique est principalement lié au temps de vie des porteurs de charge dans la photodiode, qui peuvent générer une avalanche bien après le passage de

l'impulsion laser. Ainsi, en ouvrant le détecteur 1 ns après l'impulsion, plus de 6 ordres de grandeur de bruit laser peuvent être supprimés.

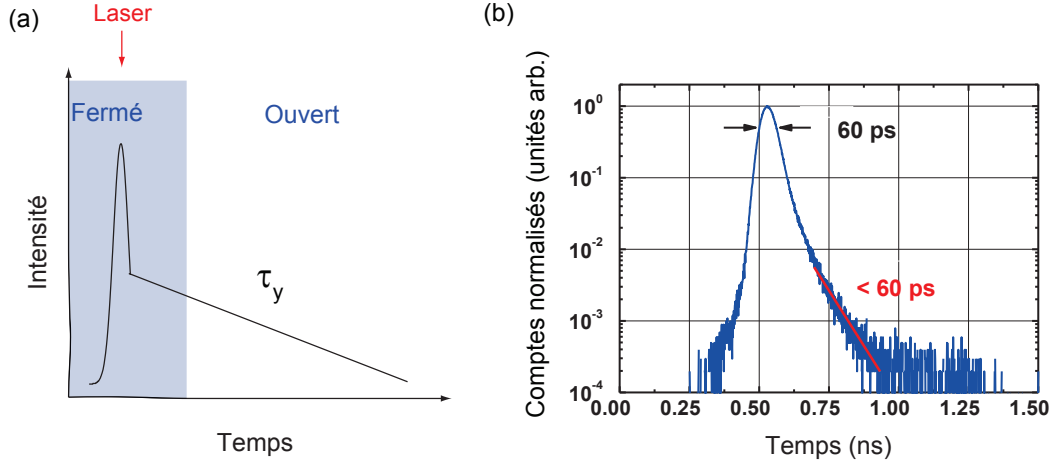


Figure 3.7 Méthode de discrimination temporelle du signal de fluorescence. (a) Représentation schématique de l'intensité de lumière en fonction du temps. En ouvrant le détecteur après l'impulsion laser, il est possible de rejeter celle-ci. (b) Réponse de la photodiode avalanche à une impulsion laser. La pleine largeur à mi-hauteur est de 60 ps et la queue de la réponse a un temps caractéristique inférieur à 60 ps.

3.3.4 Montage expérimental

La figure 3.8 présente le montage expérimental utilisé pour mesurer les rotations de Rabi et l'interférence de Ramsey. Deux lasers sont utilisés : un laser non-résonant continu à 780 nm permet de localiser les paires d'azote sur l'échantillon et un laser titane-saphir accordable permet de contrôler l'état quantique de l'exciton. Ce dernier laser émet des impulsions de 100 fs. Un interféromètre de Michelson stabilisé en phase permet de générer deux impulsions dont le délai est contrôlé avec une précision de 0.1 fs. Sans cette stabilisation, le délai peut dériver au cours d'une mesure et changer de plusieurs fs, ce qui efface toute relation de phase entre les deux impulsions ; il est alors impossible de mesurer l'interférence de Ramsey. Le fonctionnement de l'interféromètre est décrit à l'annexe A.

Un réseau de diffraction permet ensuite de combiner les deux lasers. Le réseau est placé de telle sorte que l'ordre zéro de diffraction du laser continu et l'ordre 1 de diffraction du laser pulsé soient couplés dans la même fibre. Le réseau agit également comme filtre spectral permettant d'ajuster la durée de l'impulsion entrant dans la fibre optique. Ceci est possible en plaçant une lentille à la fois à sa distance focale du réseau et de la fibre optique, c'est-à-dire en configuration $2f$, tel qu'illustré à la figure 3.8. Ainsi, la fibre se retrouve au plan de

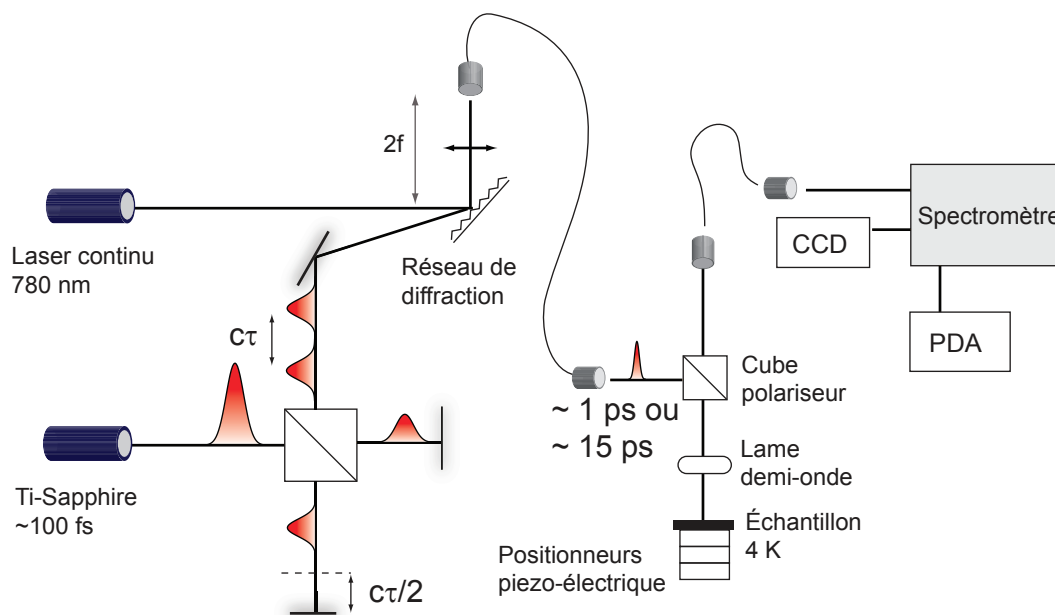


Figure 3.8 Montage expérimental servant à mesurer les rotations de Rabi et les franges de Ramsey. CCD : *Charge Coupled Device*, PDA : photodiode avalanche

Fourier du système $2f$.

La durée de l'impulsion peut être contrôlée en modifiant le pouvoir de résolution du réseau : à partir de sa largeur spectrale, nous évaluons la durée de l'impulsion à la sortie de la fibre à 1 ps lorsque le réseau est illuminé par un faisceau de 1 mm de diamètre et à 15 ps lorsque la taille du faisceau sur le réseau est de 10 mm. Notons que puisque nous injectons des impulsions picosecondes dans une fibre optique de 5 m, la dispersion des vitesses de groupe peut être négligée et les impulsions sont considérées limitées par la transformée de Fourier.

À la sortie de la fibre optique, les impulsions sont focalisées sur l'échantillon suite à un passage par un cube polariseur et une lame demi-onde tel qu'illustré à la figure 3.8. Le cube polariseur assure un filtrage en polarisation du laser et la lame demi-onde permet de choisir l'état de polarisation linéaire de l'excitation. L'échantillon est maintenu à une température de 4 K. Les paires d'azotes sont trouvées grâce à des positionneurs piézo-électriques. Une seconde fibre optique ayant un cœur de $5\text{ }\mu\text{m}$ limite l'ouverture du système optique et permet d'avoir une résolution spatiale d'environ 800 nm [104]. Finalement, la lumière collectée par la fibre optique de détection est dispersée par un spectromètre et envoyée sur un capteur CCD pour recueillir le spectre hors résonance ou encore sur la photodiode avalanche pour mesurer le signal résonant.

Le schéma du montage électrique permettant le déclenchement de la photodiode avalanche

est présenté à la figure 3.9. Un signal électrique à la fréquence de répétition du laser (80 MHz) est généré par une photodiode. Un sélecteur d'impulsions est ensuite utilisé pour réduire la fréquence du signal électrique à 40 MHz, soit la fréquence d'opération maximale du détecteur. Le signal à 40 MHz est par la suite divisé en deux. Une partie du signal déclenche le compteur d'impulsions qui retourne le nombre de comptes en fonction du temps entre l'arrivée des deux signaux (début et fin). L'autre partie du signal électrique sert à déclencher l'ouverture de la photodiode avalanche. Un générateur de délai permet d'ouvrir le détecteur 1 ns après l'impulsion laser. Finalement, lorsqu'une avalanche est générée par un photon, la photodiode envoie un signal NIM au compteur d'impulsions.

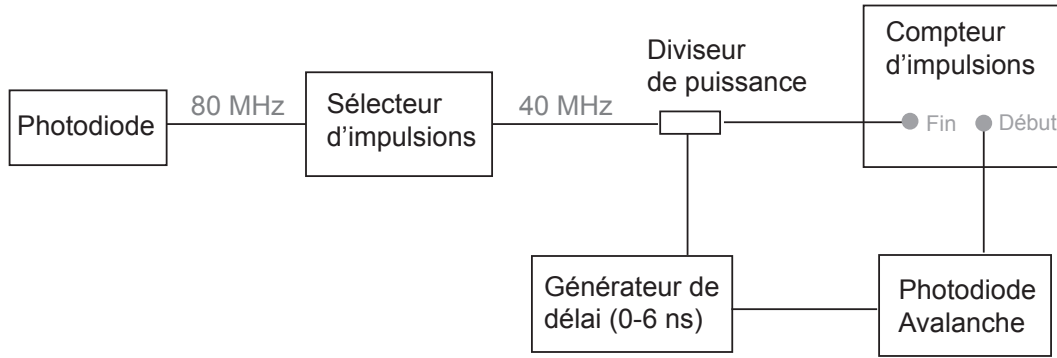


Figure 3.9 Montage électrique permettant le déclenchement de la photodiode avalanche après le passage de l'impulsion laser.

3.4 Résultats

La figure 3.10 (a) montre le spectre de PL résolu en polarisation d'une paire d'azote pour laquelle des rotations de Rabi ont été mesurées. Un laser résonant excite la transition polarisée à 90° ($|X\rangle$) et la détection de la fluorescence se fait à 0° ($|Y\rangle$). Notons que la transition à 1508.8 meV est légèrement décalée en polarisation par rapport à $|X\rangle$, ce qui nous permet de conclure qu'elle n'est pas liée à la paire d'intérêt, qui ne présente que deux transitions.

L'intensité de la fluorescence en résonance corrélée dans le temps pour trois puissances d'excitation est représentée à la figure 3.10 (b). Ces données ont été obtenues avec des impulsions de 1 ps et un délai de 1 ns entre l'impulsion et l'ouverture du détecteur. Pour éliminer le bruit résiduel provenant de la diffusion du laser, deux courbes ont été acquises pour chacune des puissances : le signal est obtenu en excitant la paire d'azote et une courbe de référence est obtenue en déplaçant l'échantillon de quelques micromètres, où l'émission de la paire n'est plus mesurable. Les deux courbes sont ensuite soustraites pour extraire la fluorescence en résonance.

Chacune des courbes a été ajustée avec le modèle suivant : $I = I_0 e^{-t/\tau_y} + C$. Le même paramètre $\tau_y = 3.9$ ns est utilisé pour chacune des courbes, alors que C est un paramètre libre puisque la position où la courbe de référence est obtenue peut varier d'une mesure à l'autre. Le paramètre I_0 donne pour sa part directement l'intensité de la fluorescence. Notons que les oscillations apparentes de l'intensité de fluorescence observables à la figure 3.10 sont attribuées au bruit de la mesure et n'ont aucune signification physique.

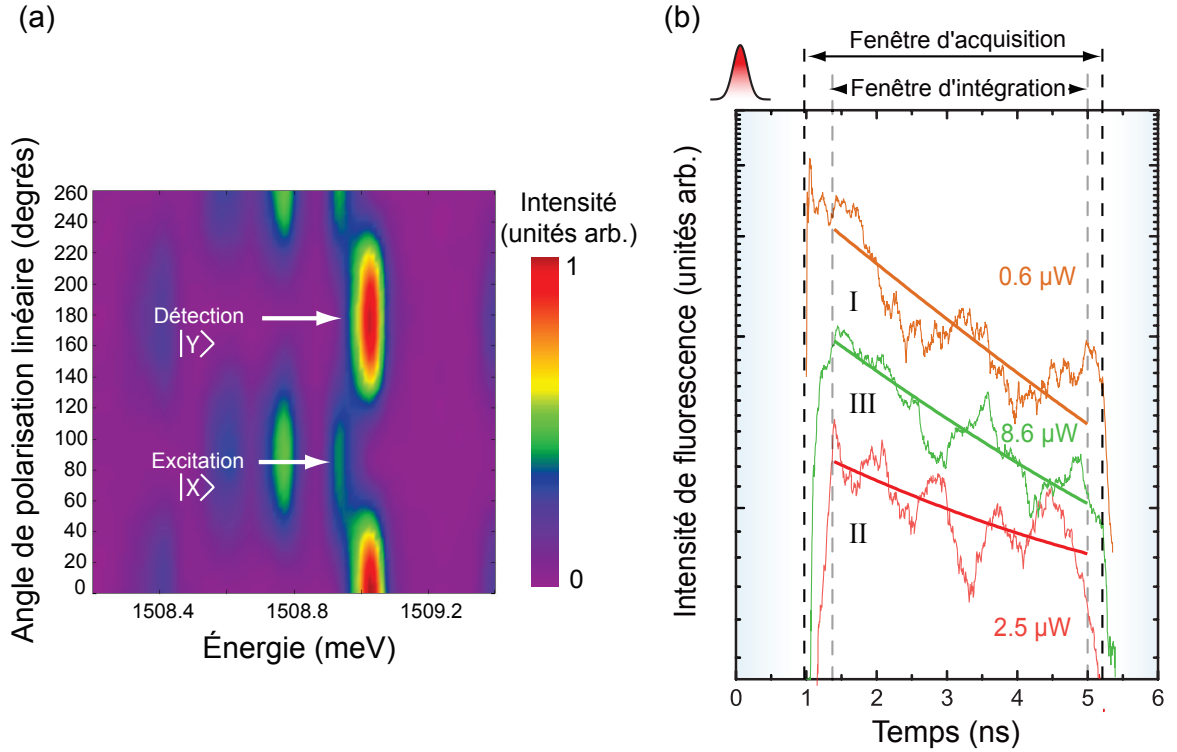


Figure 3.10 (a) PL résolue en polarisation de la paire d'azote excitée en résonance. L'excitation se fait à 90° et la détection à 0° . (b) Intensité de fluorescence en résonance en fonction du temps lorsqu'une paire d'azote est excitée avec une impulsion de 1 ps. Les trois courbes sont obtenues pour trois puissances moyennes. Les courbes en traits pleins sont ajustées à l'aide d'une exponentielle ayant un temps caractéristique $\tau_y = 3.9$ ns. Adaptée avec permission de [101].

3.4.1 Temps de vie

Pour comprendre l'origine du temps de vie de la fluorescence τ_y , la dynamique permettant à l'exciton de passer de l'état $|X\rangle$ créé par l'impulsion laser à l'état $|Y\rangle$ d'où la fluorescence est mesurée est modélisée. Pour ce faire, il est utile d'écrire des fonctions d'onde approximatives des états excitoniques entrant en jeu. Reprenons les états de base de symétrie C_{2v} donnés au tableau 2.5.

Pour une paire d'azote ne présentant que deux transitions, il est raisonnable de supposer que le mélange entre les trous lourds et les trous légers est très faible. Tel que mentionné précédemment, nous supposons que les états trous lourds sont à plus basse énergie. Dans ce cas, les quatre états d'intérêt de basse énergie sont donnés au tableau 3.1, de même que l'état fondamental $|0\rangle$, donné précédemment au chapitre 2.

Tableau 3.1 Fonctions d'onde d'excitons de symétrie C_{2v} pour une paire d'azote ne présentant que deux transitions.

Fonctions d'onde
$ Z\rangle = a_1\psi_1 + b_1\psi_5^{(z)} \approx \psi_1^{(z)}$
$ Y\rangle = a_2\psi_4^{(y)} + b_2\psi_8^{(y)} \approx \psi_4^{(y)}$
$ X\rangle = a_3\psi_2^{(x)} + b_3\psi_6^{(x)} \approx \psi_2^{(x)}$
$ D\rangle = a_4\psi_3 + b_4\psi_7 \approx \psi_3$
$ 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(-\alpha_h\beta_e + \beta_h\alpha_e)$

La dynamique d'émission faisant intervenir les niveaux $|0\rangle, |X\rangle, |Y\rangle, |Z\rangle$ et $|D\rangle$ est décrite par l'équation d'équilibre de populations suivante

$$\frac{dn_{|i\rangle}}{dt} = - \left(\Gamma_{\text{rad}}^i + \sum_{j \neq i} \Gamma_{ij} \right) n_{|i\rangle} + \sum_{j \neq i} \Gamma_{ji} n_{|j\rangle}, \quad (3.20)$$

où $n_{|i\rangle}$ est la population de l'état $|i\rangle$, Γ_{rad}^i est le taux d'émission spontanée de l'état $|i\rangle$ et Γ_{ij} est le taux de transfert de l'état $|i\rangle$ à l'état $|j\rangle$. Nous négligeons à l'équation 3.20 tout processus non-radiatifs d'échappement des excitons.

Afin de modéliser le temps de vie τ_y , il est nécessaire d'estimer les taux Γ_{rad}^i et Γ^{ij} . Le temps de vie radiatif est donné par l'opérateur moment dipolaire électrique

$$\Gamma_{\text{rad}}^i = \gamma_{\text{rad}} |\langle i | \mathbf{r} | 0 \rangle|^2, \quad (3.21)$$

où γ_{rad} est le coefficient d'émission spontanée qui correspond au coefficient d'Einstein donné par l'équation 3.22 pour un système à deux niveaux.

$$\gamma_{\text{rad}} = \frac{\omega_0^3 n \mu^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (3.22)$$

Or, nous faisons l'hypothèse que $\Gamma_{\text{rad}}^x = \Gamma_{\text{rad}}^y = \Gamma_{\text{rad}}$ et que Γ_{rad}^i est nul pour les autres états, d'après les fonctions d'onde du tableau 3.1. En prenant $\mu = 65$ D, ce qui correspond au moment dipolaire obtenu à la section 3.4.2, il est possible d'estimer Γ_{rad} .

L'estimation des taux de transfert Γ^{ij} a été réalisée grâce à une analyse détaillée du temps de vie des excitons liés aux paires d'azote dans le GaAs en fonction de la température [102]. Il a été déterminé que la dynamique de transfert est dominée par l'interaction hyperfine entre les spins des électrons et les spins nucléaires situés sous leur fonction d'onde. L'hamiltonien de l'interaction hyperfine de contact H_{hf} s'écrit [105] :

$$H_{\text{hf}} = A \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} = A \left[I_z S_z + \frac{1}{2}(I_+ S_- + I_- S_+) \right], \quad (3.23)$$

où \mathbf{I} et \mathbf{S} sont les opérateurs de spin nucléaire et électronique et A est une constante représentant l'amplitude de l'interaction. La constante A dépend des facteurs gyromagnétiques de l'électron, du noyau et de l'amplitude de probabilité de trouver l'électron à la position des noyaux. Puisque les trous dans la bande de valence d'un semi-conducteur cubique ont des fonctions d'onde de type p , l'amplitude de leur fonction d'onde est nulle sur les noyaux. Ainsi, l'interaction hyperfine de contact n'agit que sur les électrons. Nous négligerons toutes autres formes d'interaction hyperfine qui peuvent quant à elles agir sur les trous, par exemple l'interaction hyperfine anisotrope [105] ; celles-ci sont généralement beaucoup moins importantes que l'interaction hyperfine de contact.

Les termes faisant intervenir les opérateurs échelon S_- , S_+ , I_- et I_+ sont responsables des transferts entre les états excitoniques en renversant le spin de l'électron. En utilisant les fonctions d'onde données au tableau 3.1, on peut démontrer que seuls les transferts suivants sont possibles : $|X\rangle \leftrightarrow |Z\rangle$, $|X\rangle \leftrightarrow |D\rangle$, $|Y\rangle \leftrightarrow |Z\rangle$ et $|Y\rangle \leftrightarrow |D\rangle$. De plus, les éléments de matrice $\gamma_{ij} = |\langle j | H_{\text{hf}} | i \rangle|^2$ quantifiant ces transferts sont approximativement égaux dans l'approximation de faible mélange entre les trous lourds et les trous légers : $\gamma_{ij} \approx \gamma_{\text{hf}}$.

Pour qu'il y ait conservation de l'énergie lors d'un transfert, un phonon doit également être émis ou absorbé à la différence d'énergie ΔE_{ij} entre les niveaux impliqués. Le passage d'un état excitonique à un autre est donc un processus de deuxième ordre. Il est possible de déterminer le taux Γ^{ij} d'un tel processus en utilisant la théorie des perturbations au deuxième ordre :

$$\Gamma^{ij} = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{\Gamma_{\text{ph}} \gamma_{\text{hf}}}{\Delta E_{ij}^2}, \quad (3.24)$$

où Γ_{ph} est le taux d'interaction des excitons avec les phonons. Ce taux est proportionnel à $N_B + 1$ lorsqu'un phonon est émis et à N_B lorsqu'un phonon est absorbé, où N_B est la population de phonons donnée par une distribution de Bose-Einstein et évaluée à l'énergie ΔE_{ij} . Les énergies des niveaux $|Z\rangle$ et $|D\rangle$ ne sont pas observées en PL. Toutefois, ces énergies ont été positionnées relativement aux niveaux $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ en modélisant les propriétés d'émission d'une paire d'azote présentant toutes les transitions attendues en symétrie C_{2v} [102]. Ainsi,

les niveaux $|D\rangle$ et $|Z\rangle$ sont positionnés respectivement à $180 \mu\text{eV}$ et $200 \mu\text{eV}$ sous le niveau $|X\rangle$. Suite à une analyse complète de la dynamique d'émission des paires d'azote [102], nous trouvons $0.1 < \Gamma^{ij} < 0.2 \text{ ns}^{-1}$, dépendamment de la différence d'énergie entre les niveaux impliqués.

Finalement, pour simuler le temps de vie de la fluorescence après l'impulsion laser, nous posons $n_{|X\rangle}(0) = 1$ et $n_{|0\rangle}(0) = n_{|Y\rangle}(0) = n_{|Z\rangle}(0) = n_{|D\rangle}(0) = 0$. En résolvant l'équation 3.20 et en notant que $I_y(t) = n_{|Y\rangle}(t)\Gamma_{\text{rad}}$, nous obtenons la courbe de temps de vie présentée à la figure 3.11.

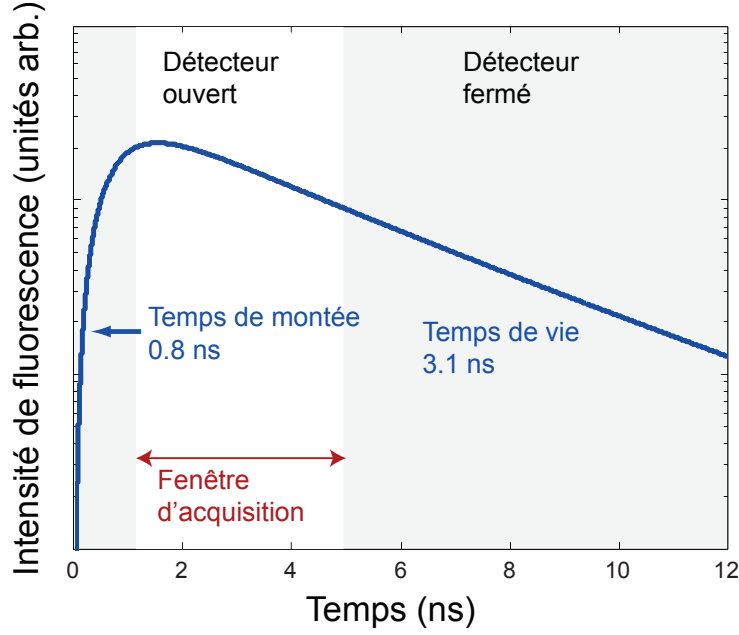


Figure 3.11 Intensité simulée de la fluorescence du niveau $|Y\rangle$ en fonction du temps. Un temps de montée de 0.8 ns et un temps de vie de 3.1 ns sont calculés. La fenêtre d'acquisition est indiquée.

Le temps de vie calculé est de 3.1 ns et s'approche de la mesure expérimentale. Les mécanismes d'interaction proposés sont donc adéquats pour décrire le transfert de populations entre les niveaux excitoniques. Puisque le temps de montée de la fluorescence est inférieur au délai de 1 ns entre l'impulsion et l'ouverture du détecteur, il n'est pas observable expérimentalement.

3.4.2 Rotations de Rabi et moment dipolaire

Pour démontrer les rotations de Rabi entre le niveau fondamental $|0\rangle$ et l'état excitonique $|X\rangle$, l'intensité de la fluorescence en fonction de la racine carrée de la puissance d'excitation est mesurée. Ces résultats sont présentés à la figure 3.12 (a). Le signal sinusoïdal démontre

clairement la rotation cohérente de l'état quantique et des rotations jusqu'à 5π ont été réalisées. Or, dans les boîtes quantiques, il est souvent difficile de distinguer des rotations de Rabi allant jusqu'à 5π à cause du déphasage induit par l'excitation, qui sera décrit à la section 3.4.3.

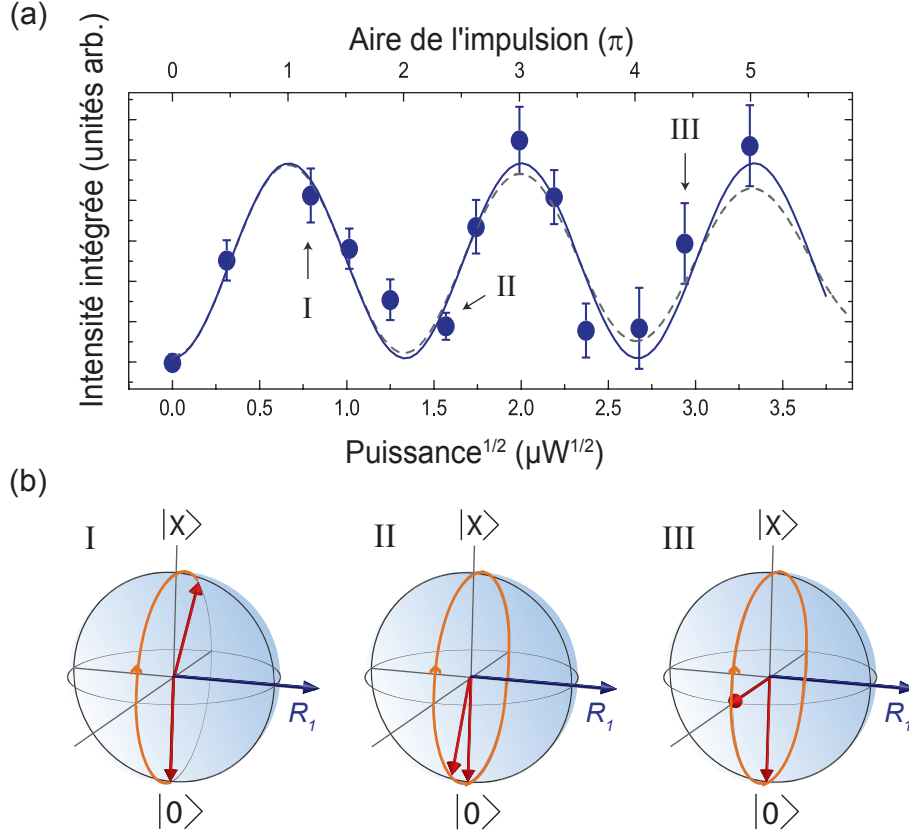


Figure 3.12 (a) Intensité intégrée de la fluorescence du niveau $|Y\rangle$ en fonction de la racine carrée de la puissance d'excitation. Les traits pleins et pointillés sont des ajustements considérant respectivement aucun déphasage et un paramètre de déphasage $K_2 = 4$ fs. (b) Rotations sur la sphère de Bloch de l'état quantique pour trois puissances différentes. Adaptée avec permission de [101]

Les barres d'erreur à la figure 3.12 ont été évaluées en faisant varier le paramètre d'amplitude de l'exponentielle décroissante montrée à la figure 3.10 jusqu'à ce que l'ajustement de courbe ne soit plus satisfaisant. Lorsque la puissance d'excitation devient plus importante, le signal devient plus bruité, car le nombre de porteurs résiduels dans le détecteur au moment de son déclenchement devient plus grand. Pour cette raison, les barres d'erreurs sont plus importantes à haute puissance. Par ailleurs, une augmentation linéaire de l'intensité intégrée en fonction de la puissance d'excitation a été soustraite aux données pour obtenir la figure 3.12 (a). Cette augmentation pourrait provenir d'une variation de la réflectivité de

l'échantillon entre le point où le signal est mesuré et le point où la courbe de référence est mesurée.

Moment dipolaire

Puisque la période de l'oscillation de la figure 3.12 (a) est proportionnelle à l'aire de l'impulsion, il est possible d'extraire le moment dipolaire de l'exciton de ces données grâce à l'équation 3.19. En considérant un taux de répétition $1/\tau_R = 80$ MHz, une durée d'impulsion $\tau_p = 1$ ps, un indice de réfraction $n = 3.6$ pour le GaAs et une aire de focalisation du faisceau $S = 0.785 \mu\text{m}^2$ (correspondant à un diamètre estimé de $1 \mu\text{m}$), un moment dipolaire de $\mu = 65$ D est trouvé. L'incertitude sur cette valeur est évaluée à 28 D et provient principalement de l'incertitude sur l'aire du faisceau. Puisqu'il est difficile de déterminer si le faisceau est parfaitement focalisé sur l'échantillon, son diamètre est estimé entre la limite de diffraction ($d = 0.63 \mu\text{m}$) et deux fois cette valeur ($d = 1.25 \mu\text{m}$).

La figure 3.13 présente des rotations de Rabi obtenues sur deux autres paires d'azote à l'aide d'impulsions de 15 ps. La structure fine de ces paires ne présentant que deux transitions est présentée en (a) et (b). Des résultats similaires sont obtenus peu importe si la transition à haute énergie, en (a) ou la transition à basse énergie, en (b), est excitée. Ceci n'est pas surprenant puisque tel que démontré à la section 3.4.1, l'émission (très probable) et l'absorption (peu probable à basse température) d'un phonon sont nécessaires pour passer d'un état brillant à l'autre via un état noir par l'interaction hyperfine. Or, peu importe le niveau excité, les deux interactions sont nécessaires.

La période des oscillations de la fluorescence présentées en (c) et (d) correspond à des moments dipolaires de 12.5 D et 3.4 D, respectivement. Le moment dipolaire moyen est donc de 27 D. Il est similaire aux moments dipolaires observés dans les boîtes quantiques auto-assemblées de InGaAs (10-60 D) [36–42] et près d'un ordre de grandeur supérieur à ceux observés dans les centres NV dans le diamant (~ 5 D) [106].

Pour un exciton lié à une boîte quantique, il est généralement admis que plus le centre de masse de l'exciton est délocalisé, plus son moment dipolaire est élevé [107]. Ceci pourrait expliquer le très fort moment dipolaire d'un exciton lié à une paire d'azote : bien que l'électron soit fortement localisé, le trou, lié par interaction coulombienne, l'est beaucoup moins. Ainsi, le centre de masse de l'exciton devrait être relativement délocalisé.

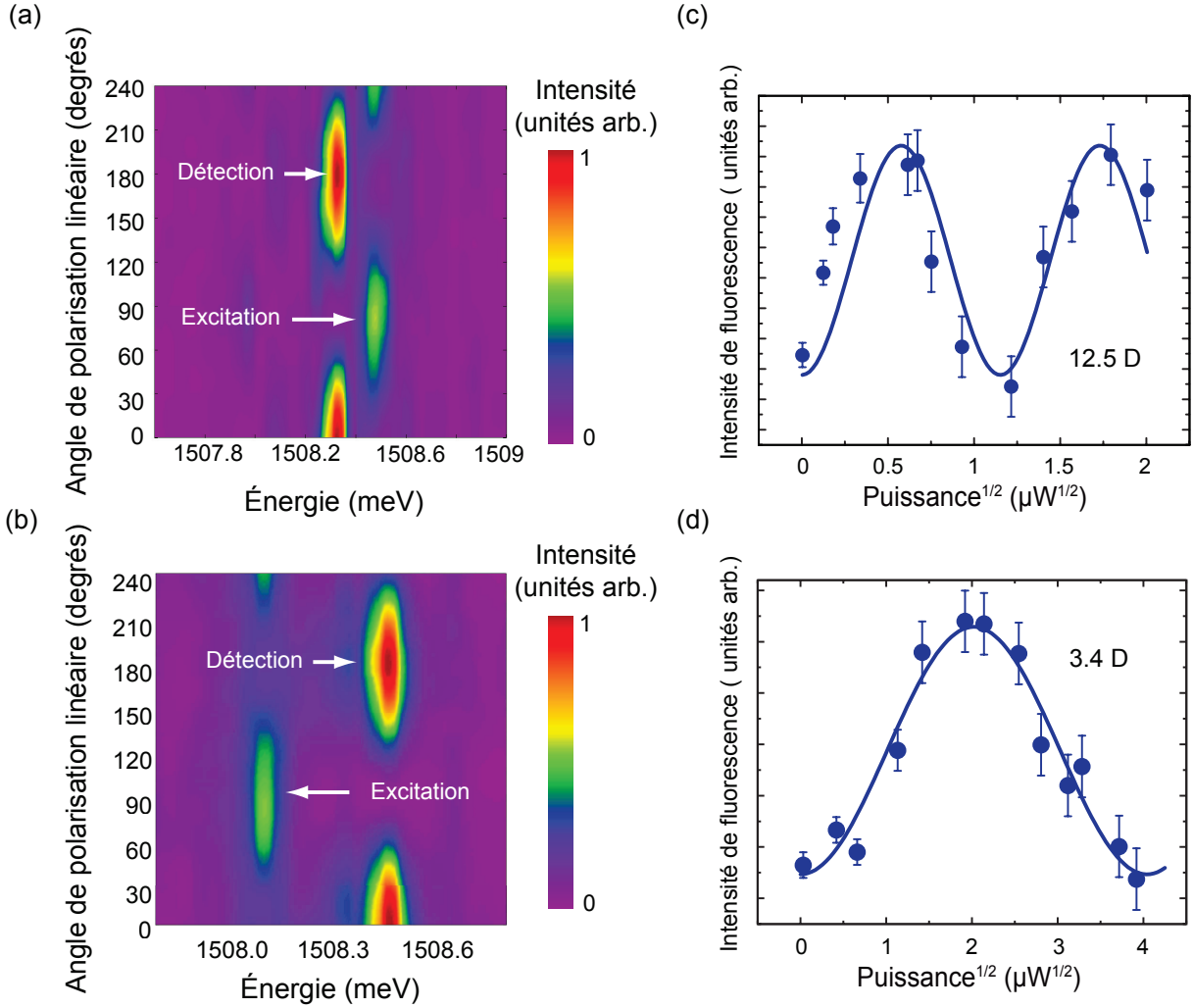


Figure 3.13 Rotations de Rabi mesurées sur deux autres paires d'azote. La PL résolue en polarisation est présentée en (a) et (b). La transition à haute énergie est excitée en (a) ; l'excitation en (b) est à basse énergie. Les rotations de Rabi ainsi que les moments dipolaires sont donnés en (c) et (d). Adaptée avec permission de [101].

3.4.3 Déphasage induit par l'excitation

Le phénomène de déphasage induit par l'excitation décrit une perte de cohérence lors des rotations de Rabi lorsque la puissance d'excitation est élevée. Il est systématiquement observé dans les boîtes quantiques [36, 40, 42, 99]. Il se traduit par une atténuation de la variation sinusoïdale de l'intensité de fluorescence en fonction de la puissance d'excitation. Lorsque le déphasage induit par l'excitation est grand, il n'est pas possible de réaliser des rotations de Rabi fidèles à haute puissance ; les rotations de Rabi doivent être réalisées à basse puissance et nécessairement sur un temps plus long. Ce phénomène limite donc le temps d'opération minimal d'un qubit.

Pour décrire le déphasage induit par l'excitation, nous utilisons le formalisme de la matrice densité. En absence de dissipateur, l'évolution des éléments de matrice est trouvée en utilisant l'hamiltonien de l'équation 3.8 et l'équation 3.13

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{0X} &= \frac{i\Omega(t)}{2} [1 - 2\rho_{XX}] \\ \dot{\rho}_{XX} &= \frac{i\Omega(t)}{2} [\rho_{X0} - \rho_{0X}].\end{aligned}\tag{3.25}$$

Puisque la matrice densité est hermitienne, $\rho_{0X} = \rho_{0X}^*$. De plus, puisque sa trace vaut 1, $\rho_{00} = 1 - \rho_{XX}$. Les deux expressions à l'équation 3.25 sont donc suffisantes pour décrire l'évolution du système.

En supposant que le temps de cohérence T_2^* est beaucoup plus court que le temps d'émission spontanée T_1 , on peut négliger l'effet T_1 ; le dissipateur n'agit alors que sur l'évolution de ρ_{0X} . Le terme $\dot{\rho}_{0X}$ devient

$$\dot{\rho}_{0X} = \frac{i\Omega(t)}{2} [1 - 2\rho_{XX}] - [\Gamma_2^* + K_2\Omega^2(t)].\tag{3.26}$$

Le taux $\Gamma_2^* = 1/T_2^*$ décrit le déphasage en l'absence de déphasage induit par l'excitation. Le terme en $\Omega^2(t)$, qui est proportionnel à la puissance d'excitation, décrit le déphasage induit par l'excitation.

Il est possible de trouver une borne supérieure à K_2 en modélisant les rotations de Rabi présentées à la figure 3.12 (a) par l'équation 3.26. Le trait tireté à la figure 3.12 (a) a été obtenu avec $K_2 = 4$ fs. Pour une valeur de K_2 supérieure à 4 fs, la courbe modélisée n'est plus comprise à l'intérieur des incertitudes des points expérimentaux.

La valeur de K_2 trouvée est environ un ordre de grandeur inférieure à celle observée dans les boîtes quantiques de InGaAs, $K_2 = 44$ fs [99]. Dans ce système, l'interaction des excitons avec les phonons LA via le potentiel de déformation a été proposée comme principal mécanisme

à la source du déphasage induit par l'excitation [99, 108]. À l'aide d'un modèle quantique décrivant l'interaction du système à deux niveaux avec un bain de phonons, il a été démontré que la constante K_2 s'écrit [99]

$$K_2 = \frac{D_X^2}{4\pi\rho_v c^5 \hbar^2} k_B T, \quad (3.27)$$

où ρ_v est la masse volumique du GaAs, k_B la constante de Boltzmann, T la température de l'échantillon et D_X le potentiel de déformation de l'exciton, qui décrit la variation d'énergie de l'exciton induite par une contrainte dans le réseau cristallin. Grâce à des mesures de PL sous pression hydrostatique, le potentiel de déformation d'un exciton lié à une paire d'azote a été déterminé : $D_X \approx 3.7$ eV [65]. Celui-ci se compare avantageusement au potentiel de déformation de 9 eV d'un exciton dans les boîtes quantiques [99]. Une réduction de K_2 d'environ un ordre de grandeur pour un exciton lié à une paire d'azote par rapport aux boîtes quantiques est donc attendu, ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux.

3.4.4 Interférence de Ramsey

Une mesure d'interférence de Ramsey a été réalisée sur la paire présentée à la figure 3.13(b). Deux impulsions $\pi/2$ ($\bar{P} = 1.8 \mu\text{W}$) d'une durée de 15 ps, séparées par un délai $\tau = \tau_f + \tau_c$ excitent la paire. La figure 3.14 présente l'intensité de fluorescence en fonction du délai fin τ_f lorsque le délai grossier τ_c est fixé à 50 ps. Le délai grossier est ajusté en déplaçant un des deux miroirs de l'interféromètre en translation. La position du miroir correspondant à un délai de 0 ps est obtenue lorsqu'un signal d'interférence entre les deux impulsions femtosecondes peut être mesuré. Le délai fin est contrôlé en stabilisant la phase de l'interféromètre de Michelson.

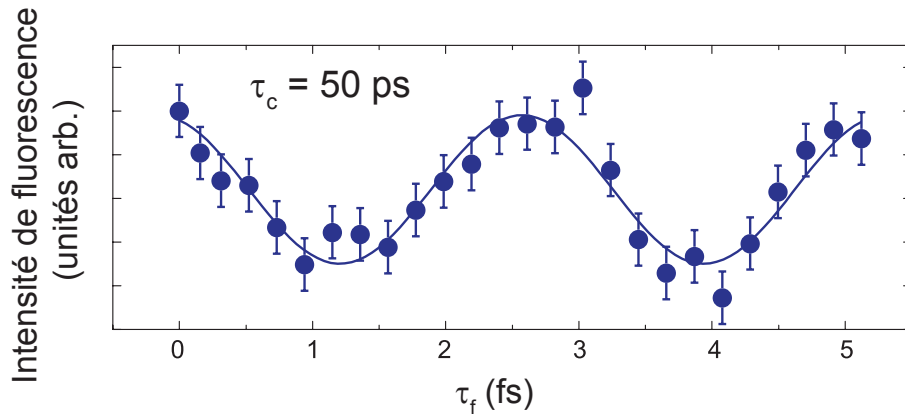


Figure 3.14 Intensité de fluorescence en fonction du délai fin τ_f entre deux impulsions $\pi/2$. Des franges de Ramsey sont clairement observables. Adaptée avec permission de [101].

Les intensités sont de nouveau obtenues en ajustant une décroissance exponentielle aux courbes de temps de vie mesurées en déclenchant le détecteur 1 ns après la seconde impulsion. Les incertitudes représentent la plage d'amplitude acceptable permettant d'obtenir un ajustement de courbe satisfaisant. Puisque la puissance d'excitation dans cette expérience est fixe, il n'est pas nécessaire de prendre une courbe de référence en déplaçant l'échantillon pour supprimer le bruit laser résiduel. Toutes les intensités présentées sont plutôt relatives à l'intensité obtenue pour un délai $\tau_f = 0$ fs, ce qui permet de s'affranchir du bruit résiduel constant au cours de l'expérience.

L'observation de franges de Ramsey est une démonstration claire d'un contrôle cohérent et complet d'un système quantique à deux niveaux.

3.4.5 Temps de cohérence

Il est possible d'extraire le temps de cohérence T_2^* de l'exciton en mesurant l'amplitude ΔI des franges de Ramsey en fonction du délai grossier τ_c . En effet, une perte de cohérence de l'exciton résulte en une diminution de la visibilité des franges de Ramsey. Une telle mesure est présentée à la figure 3.15. La fonction d'auto-corrélation du laser, obtenue en mesurant la visibilité de l'interférence des deux impulsions en fonction du délai, est également présentée. Le fait que la décroissance des franges de Ramsey se fait sur une échelle de temps beaucoup plus grande que la décroissance de la fonction d'auto-corrélation du laser confirme que l'interférence de Ramsey est bien mesurée.

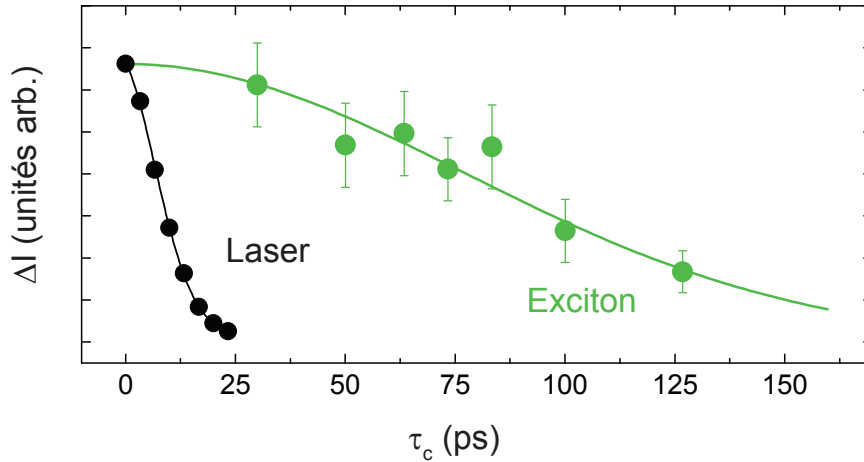


Figure 3.15 Amplitude des franges de Ramsey en fonction du délai grossier τ_c . La fonction d'auto-corrélation du laser est également présentée. Adaptée avec permission de [101].

Le temps de cohérence de l'exciton est déterminé par son interaction avec son environnement

qui fluctue dans le temps. Pour déterminer le temps de cohérence à partir de la figure 3.15, deux cas limites sont analysés : 1) si le temps de corrélation de l'environnement est beaucoup plus grand que le temps d'une séquence de Ramsey ($\tau_{\text{corr}} \gg T_2^*$), le bruit est non-markovien et la décroissance des franges de Ramsey suivra une fonction gaussienne ($\Delta I(t) \sim e^{-(t/T_2^*)^2}$) ; 2) dans l'autre limite, où le temps $\tau_{\text{corr}} \ll T_2^*$, le bruit est markovien et la décroissance suit une fonction exponentielle ($\Delta I(t) \sim e^{-t/T_2^*}$) [109]. Les deux cas sont présentés à la figure 3.16. Avec un ajustement exponentiel (trait tireté), on trouve un temps de cohérence de $T_2^* = 72$ ps, alors qu'avec un ajustement gaussien (trait plein), on trouve $T_2^* = 115$ ps. L'incertitude sur l'ajustement est évaluée à 30 ps.

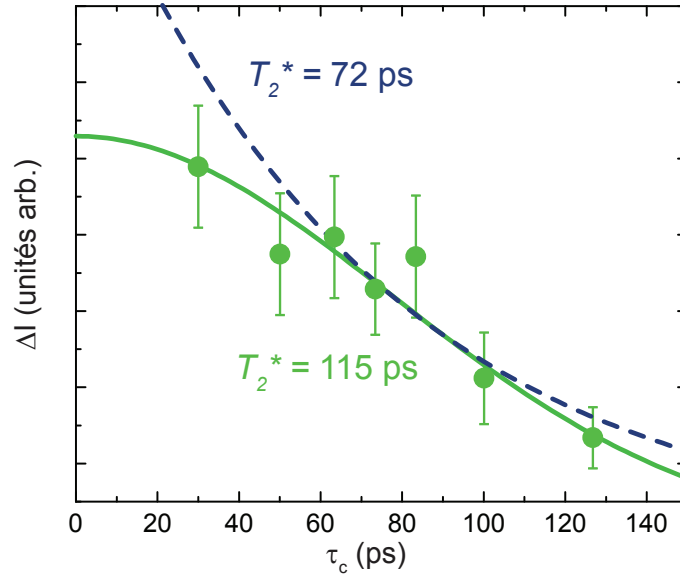


Figure 3.16 Ajustements de la décroissance de l'amplitude des franges de Ramsey avec un modèle gaussien (trait plein) et exponentiel (trait tireté). Des temps de cohérence de 72 et 115 ps sont respectivement obtenus.

L'ajustement gaussien à la figure 3.16 semble plus approprié, particulièrement à faible délai. Nous concluons donc que le bruit menant au déphasage de l'exciton est non-markovien. Des fluctuations de la distribution de charge dans l'environnement ont été proposées comme mécanisme de déphasage dans les boîtes quantiques [30] et pourraient être à l'origine de la perte de cohérence observée. En effet, de telles fluctuations sont relativement lentes (de l'ordre de la microseconde) et auraient pour effet de modifier légèrement l'énergie de l'exciton et ainsi la phase accumulée entre deux impulsions.

Largeur de raie

Le temps de cohérence d'un exciton est également lié à sa largeur de raie par la relation d'incertitude $\Delta E T_2^* = \hbar/2$ [98]. La largeur de raie ΔE d'un exciton a donc été mesurée à l'aide d'un interféromètre de Fabry-Pérot. Toutefois, celle-ci a été obtenue pour une paire d'azote différente de celle ayant servi à la démonstration de l'interférence de Ramsey. La figure 3.17 montre le signal de PL après un passage dans le Fabry-Pérot en balayant l'espacement entre les miroirs de celui-ci. Le signal est mesuré par un spectromètre et intégré à 821.8 nm. L'échelle d'énergie est calibrée à partir de l'intervalle spectral libre de 100 μeV donné par le fabricant de l'interféromètre. Le trait plein est un ajustement de courbe obtenu en convoluant une lorentzienne à une fonction d'Airy. Une résolution du Fabry-Pérot de 6 μeV , également donnée par le fabricant, a été considérée. Une demie largeur à mi-hauteur de 9 μeV est ainsi extraite, ce qui correspond à un temps de cohérence de 37 ps.

Il est toutefois important de préciser que la résolution du Fabry-Pérot n'a pas pu être mesurée puisqu'aucune source suffisamment étroite émettant à une longueur d'onde similaire à la longueur d'onde de la PL n'était disponible. Il est donc possible que la résolution donnée par le fabricant ne soit pas adéquate, à cause, par exemple, d'une erreur sur l'alignement de l'interféromètre. Ainsi, il est uniquement possible de conclure que $T_2^* > 37$ ps à partir de la mesure présentée à la figure 3.17. Cette conclusion est en accord avec le temps de cohérence mesuré par l'interférence de Ramsey.

3.5 Conclusion

Pour conclure, la mesure de rotations de Rabi et d'interférences de Ramsey nous a permis de démontrer le contrôle quantique cohérent et complet d'un qubit formé par un exciton. Il est donc possible de définir un qubit utilisable à l'aide de centres isoélectroniques. Les résultats obtenus confirment que les centres isoélectroniques pourraient s'avérer une plateforme avantageuse pour la réalisation d'interfaces optiques. D'une part, le moment dipolaire très élevé des excitons est un avantage considérable par rapport aux centres NV pour éventuellement réaliser un couplage fort entre un état excitonique et un photon. De plus, les techniques de micro-fabrication dans le GaAs sont beaucoup plus avancées que dans le diamant ; la réalisation de cavités optiques de haute qualité dans le GaAs est en effet beaucoup plus courante.

D'autre part, la nature atomique des centres isoélectroniques assure une prédictibilité et une uniformité des propriétés optiques d'un centre à l'autre, ce qui n'est pas le cas des boîtes quantiques. En effet, celles-ci étant composées de $\sim 10^5$ atomes, leur inhomogénéité est grande. Notons également que le déphasage induit par l'excitation étant plus faible dans

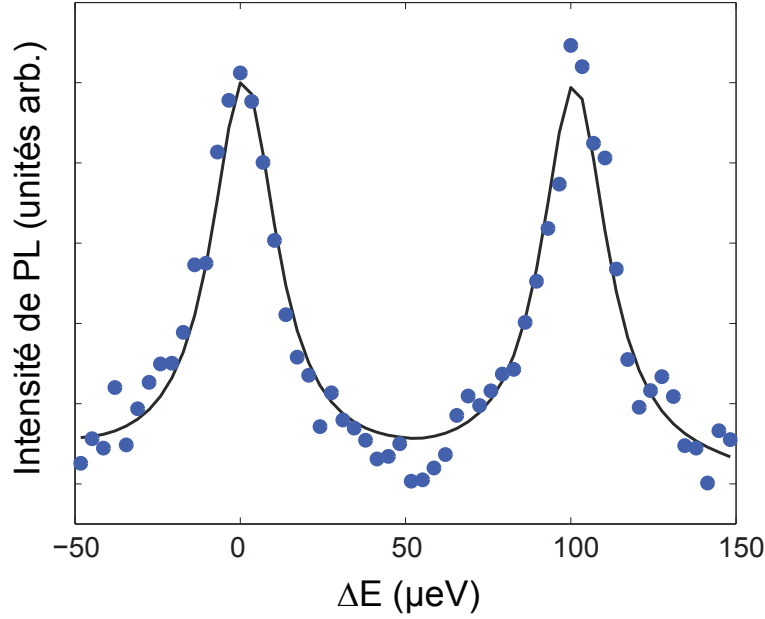


Figure 3.17 Intensité de PL à la sortie d'un interféromètre de Fabry-Pérot. L'échelle d'énergie est calibrée en utilisant un intervalle spectral libre de $100 \mu\text{eV}$ donné par le fabricant. Le trait plein est obtenu en convoluant une lorentzienne ayant une demie largeur à mi-hauteur de $9 \mu\text{eV}$ avec une fonction d'Airy.

les centres isoélectroniques, il est théoriquement possible de réaliser des portes quantiques à haute fidélité sur un temps t_{op} plus court. Or, puisque les temps de cohérence sont similaires dans les deux systèmes, le nombre d'opérations réalisées à l'intérieur du temps de cohérence, $n_{\text{op}} = T_2^*/t_{\text{op}}$, devrait être plus élevé d'un ordre de grandeur dans les centres isoélectroniques.

Les résultats obtenus dans ce chapitre stimulent donc l'intérêt des centres isoélectroniques pour les technologies quantiques. Toutefois, le potentiel des qubits excitoniques pour la réalisation d'interfaces optiques semble limité. En effet, il est difficile de transférer de façon cohérente l'état quantique d'un exciton à un photon, puisque l'émission d'un photon se produit après projection de l'état du qubit sur l'état excité. De plus, le temps de cohérence des excitons étant extrêmement court, il apparaît difficile en pratique de réaliser des portes à deux qubits. Des qubits définis par le spin d'un électron ou d'un trou lié à un centre isoélectronique devraient présenter un temps de cohérence de plusieurs ordres de grandeur plus élevés et semblent donc plus prometteurs pour la réalisation d'interfaces optiques. Le potentiel des centres isoélectroniques pour réaliser de tels qubits sera ainsi évalué aux chapitres 5 et 6.

CHAPITRE 4 ÉTATS EXCITONIQUES HABILLÉS

Au chapitre précédent, il a été démontré que l'interaction d'un système à deux niveaux avec un laser résonant et pulsé permet de contrôler l'état quantique du système. Or, en plus d'affecter les fonctions propres d'un système à deux niveaux, un champ résonant a également un impact sur ses énergies propres. L'effet Stark AC est responsable de cette modification des énergies sous l'application d'un champ électromagnétique intense. Cet effet est à l'origine de deux phénomènes importants en optique quantique qui se manifestent dans les spectres de fluorescence en résonance : le triplet de Mollow et le doublet d'Autler-Townes. Ces deux phénomènes ne peuvent être expliqués adéquatement que par l'introduction d'états excitoniques habillés, c'est-à-dire des états pour lesquels les excitons et les photons sont quantifiés et peuvent être couplés.

L'effet Stark AC a été observé à de nombreuses reprises dans les boîtes quantiques [37, 110–116]. En plus de son intérêt fondamental, cet effet pourrait s'avérer utile dans un contexte de technologies quantiques. Par exemple, des sources de photons intriqués peuvent être réalisées via une cascade biexcitonique en utilisant avantageusement l'effet Stark AC [60]. L'utilisation de l'effet Stark AC a également été proposée afin de créer une transition de recyclage permettant la lecture d'un spin électronique en configuration de champ magnétique de Voigt [117] ou encore afin d'augmenter le temps de cohérence d'un trou sujet à des fluctuations de champ électrique dans une boîte quantique [118].

Dans ce chapitre, les états habillés et le spectre de fluorescence en résonance sont d'abord décrits théoriquement. Puis nous présentons une expérience de fluorescence en résonance réalisée avec un laser continu indiquant qu'il est possible d'habiller des états excitoniques liés à des centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs. Cette expérience nous permet par ailleurs de confirmer le haut moment dipolaire électrique des excitons liés à ces centres.

4.1 Effet Stark AC

L'effet Stark AC est observé lorsqu'un laser résonant (ou quasi-résonant) excite une transition optique. Il se manifeste par une variation des niveaux d'énergie impliqués dans la transition. Reprenons l'hamiltonien d'interaction 3.8 d'un système à deux niveaux excités en résonance

$$H_I = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\Omega^* \\ -\Omega & 2\Delta \end{pmatrix}.$$

Les énergies propres de cet hamiltonien sont $E_{\pm} = \frac{\hbar(\Delta \pm \omega_r)}{2}$, où $\omega_r = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$. Ainsi, en résonance ($\Delta = 0$), l'effet Stark AC résulte en une modification des niveaux d'énergie de $\pm \frac{\hbar\Omega}{2}$. De plus, les vecteurs propres du système sont mélangés par le laser d'excitation. Dans la base $\{|0\rangle, |X\rangle\}$, les vecteurs propres deviennent

$$\begin{aligned} |\psi_+\rangle &= \cos\theta |0\rangle - \sin\theta |X\rangle \\ |\psi_-\rangle &= \sin\theta |0\rangle + \cos\theta |X\rangle, \end{aligned} \quad (4.1)$$

où $\tan\theta = \frac{\Omega}{\omega_r - \Delta}$. Lorsque le laser est résonant, $\tan\theta = 1$ et les deux états propres du système ont des proportions égales des états $|0\rangle$ et $|X\rangle$.

Jusqu'à maintenant, tous les développements ont été réalisés à l'aide d'une approche semi-classique, où seulement les niveaux excitoniques ont été quantifiés. Toutefois, afin de bien décrire le rôle que joue l'effet Stark AC sur les propriétés d'émission d'un système à deux niveaux, il est nécessaire de quantifier également le champ électromagnétique. L'hamiltonien d'interaction doit alors être remplacé par un hamiltonien de Jaynes-Cummings et les états écrits dans la base couplée photons-excitons (voir, par exemple, [119]). Les états excitoniques dans cette base sont nommés états habillés. La base d'états habillés est formée de l'état à un exciton et n photons laser $|X, n\rangle$ et de l'état où il n'y a pas d'exciton et $n + 1$ photons $|0, n + 1\rangle$. Les états propres habillés sont donc [119, 120]

$$\begin{aligned} |\psi_+, n\rangle &= \cos\theta |0, n + 1\rangle - \sin\theta |X, n\rangle \\ |\psi_-, n\rangle &= \sin\theta |0, n + 1\rangle + \cos\theta |X, n\rangle. \end{aligned} \quad (4.2)$$

Ainsi, en résonance, les états propres sont 50% excitoniques ($|X, n\rangle$) et 50% photoniques ($|0, n + 1\rangle$). Par ailleurs, les énergies propres du système photons-excitons couplés sont [119]

$$E_{n,\pm} = (n + 1)\hbar\omega_L + \frac{\hbar\Delta}{2} \pm \frac{\hbar\omega_r}{2}, \quad (4.3)$$

où ω_L est la fréquence du laser.

Le spectre de fluorescence en résonance est donc modifié lorsque les états excitoniques sont habillés. Tel qu'illustré à la figure 4.1, un photon peut être émis par émission spontanée entre deux états habillés (de $|\psi_{\pm}, n + 1\rangle$ à $|\psi_{\pm}, n\rangle$). La probabilité de transition est proportionnelle à la fraction excitonique de l'état initial et à la fraction photonique de l'état final. Lorsque le laser est parfaitement résonant, tous les états habillés ont la même proportion excitonique

et photonique, ce qui fait en sorte que les quatre transitions illustrées à la figure 4.1 sont équiprobables. De ces quatre transitions, deux ont l'énergie $\hbar\omega_L$ du laser et les deux autres ont les énergies $\hbar\omega_L \pm \hbar\Omega$. Le spectre de fluorescence en résonance d'un système à deux niveaux est ainsi caractérisé par un triplet, nommé triplet de Mollow [121]. Le triplet de Mollow a été observé à plusieurs reprises dans les boîtes quantiques [115, 116].

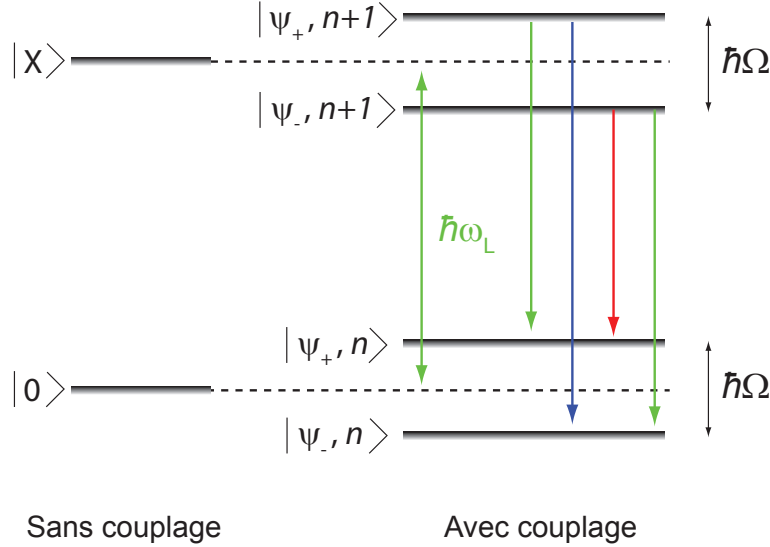


Figure 4.1 Niveaux d'énergie d'un système à deux niveaux sans couplage et lorsque les niveaux sont couplés par un laser résonant. Dans le cas où le laser est parfaitement résonant ($\Delta = 0$), les états habillés d'indice n sont séparés par une énergie $\hbar\Omega$. Dans ce cas, quatre transitions optiques sont possibles, deux à la fréquence $\hbar\omega_L$ et deux autres aux fréquences $\hbar\omega_L \pm \hbar\Omega$.

Le triplet de Mollow n'est toutefois pas observé lorsque la fluorescence est détectée à partir d'une transition témoin, comme ce sera le cas dans l'expérience présentée dans ce chapitre. La situation est alors décrite à la figure 4.2. Le laser résonant habille les états $|0\rangle$ et $|X_2\rangle$, mais interagit très peu avec les autres états avec lesquels il n'est pas résonant. Si la fluorescence est détectée de l'état témoin $|Y_1\rangle$, puisque le niveau $|0\rangle$ est habillé, deux transitions sont observables. Le spectre de fluorescence est alors caractérisé par un doublet, nommé doublet d'Autler-Townes [122]. Ce doublet a également été mesuré dans de nombreux systèmes, incluant les boîtes quantiques [37, 110–114].

4.2 Méthodologie expérimentale

Les mesures de fluorescence en résonance ont été réalisées en utilisant le même montage de micro-PL présenté au chapitre 3 et le même échantillon maintenu à une température de 4 K. Tel que schématisé à la figure 4.3, deux lasers, couplés à la même fibre optique, sont

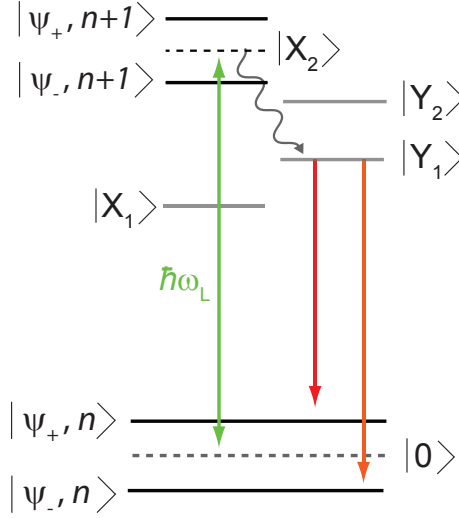


Figure 4.2 Représentation schématique du doublet d'Autler-Townes. Lorsqu'un laser est résonant avec la transition $|0\rangle$ à $|X_2\rangle$, les deux états sont habillés. Le spectre d'émission d'un état témoin, par exemple $|Y_1\rangle$, est alors formé d'un doublet.

utilisés : un laser non-résonant à 780 nm permet de localiser les paires d'azote, puis, un laser Ti:Sapphire opéré en mode continu est utilisé pour mesurer la fluorescence en résonance. Un interféromètre de Fabry-Pérot a permis de conclure que la largeur de raie du laser résonant est inférieure à $20 \mu\text{eV}$.

Tout comme au chapitre 3, la détection de la fluorescence se fait en polarisation croisée, ce qui permet de supprimer plus de trois ordres de grandeur de lumière laser parasite. Pour ce faire, deux polariseurs linéaires sont placés orthogonalement dans le montage, un à l'excitation et l'autre à la détection. Une lame demi-onde est placée entre les deux polariseurs de façon à choisir l'angle de polarisation linéaire du laser d'excitation et de ce fait la polarisation détectée.

Contrairement aux mesures présentées au chapitre 3, il est impossible de discriminer temporellement le signal de fluorescence du laser d'excitation. La stratégie adoptée en utilisant un laser continu est plutôt de discriminer spectralement le signal d'intérêt du laser d'excitation. Pour réaliser un filtrage spectral efficace, il est nécessaire d'éliminer la lumière parasite (*stray light*) du système optique. La lumière parasite est de la lumière provenant du laser d'excitation, qui est à une longueur d'onde différente du signal d'intérêt, mais qui frappe le détecteur au même endroit que le signal d'intérêt. Il s'agit donc de lumière ne parcourant pas le chemin optique prévu à cause, par exemple, de la diffusion sur les composants optiques du montage. Ainsi, la lumière parasite limite généralement le filtrage spectral d'un spectromètre à environ 4 ordres de grandeur.

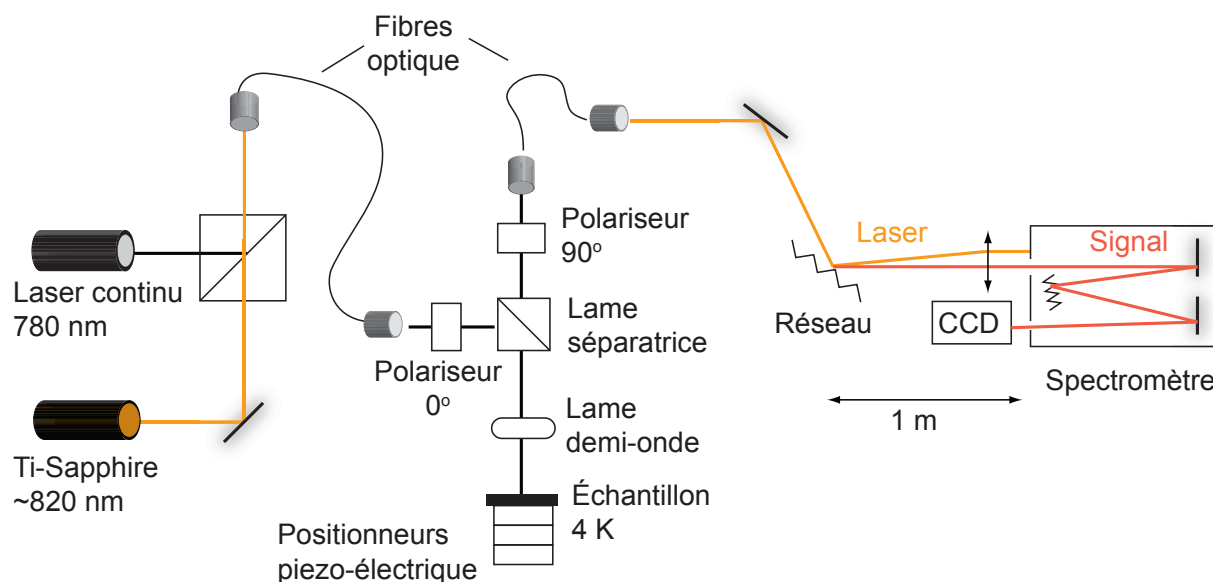


Figure 4.3 Montage permettant de mesurer la fluorescence en résonance. Un laser continu à 780 nm permet de localiser les paires d'azote. Un laser Ti-Sapphire est placé en résonance. L'échantillon est maintenu à 4 K et est excité avec de la lumière polarisée linéairement. Une lame demi-onde permet d'ajuster la polarisation d'excitation. La lumière est détectée en polarisation linéaire croisée. Un réseau est placé devant un spectromètre afin de supprimer la lumière parasite. Le signal est mesuré par un capteur CCD.

Pour éliminer la lumière parasite, des spectromètres doubles sont souvent utilisés [29, 30]. Dans cette expérience, un spectromètre double a été réalisé en plaçant un réseau additionnel à environ 1 m du spectromètre, tel qu'illustré à la figure 4.3. De cette façon, il est possible de ne faire entrer dans le spectromètre que le signal à la longueur d'onde d'intérêt et de bloquer la lumière provenant du laser ; cela permet d'éliminer environ quatre ordres de grandeur supplémentaires de lumière parasite. Ainsi, nous estimons qu'un filtrage de 8 ordres de grandeur du laser d'excitation est possible spectralement lorsque la différence d'énergie entre le laser et la fluorescence détectée est de $400 \mu\text{eV}$. Mentionnons toutefois que la fente d'entrée du spectromètre ne doit pas avoir une largeur de plus de $80 \mu\text{m}$ pour réaliser un bon filtrage spectral ; la fente limite donc la largeur du spectre qui peut être mesurée à environ $400 \mu\text{eV}$. Finalement, le spectre est mesuré par un capteur CCD. La résolution en énergie du spectromètre et CCD combinés est de $30 \mu\text{eV}$. En ajustant une lorentzienne sur les raies d'émission, une résolution de $5 \mu\text{eV}$ peut être atteinte.

4.3 Fluorescence en résonance excitée par un laser continu

Dans cette section, les spectres de fluorescence en résonance d'une paire d'azote de symétrie C_{2v} en configuration NN_1 sont présentés. La figure 4.4 (a) présente le spectre de PL non-résonante de cette paire en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Quatre transitions sont observées, polarisées à 45° et 135° , angles caractéristiques d'une paire hors plan. Les deux états excitoniques polarisés à 45° sont notés $|X_1\rangle$ et $|X_2\rangle$ et les deux états polarisés à 135° sont notés $|Y_1\rangle$ et $|Y_2\rangle$.

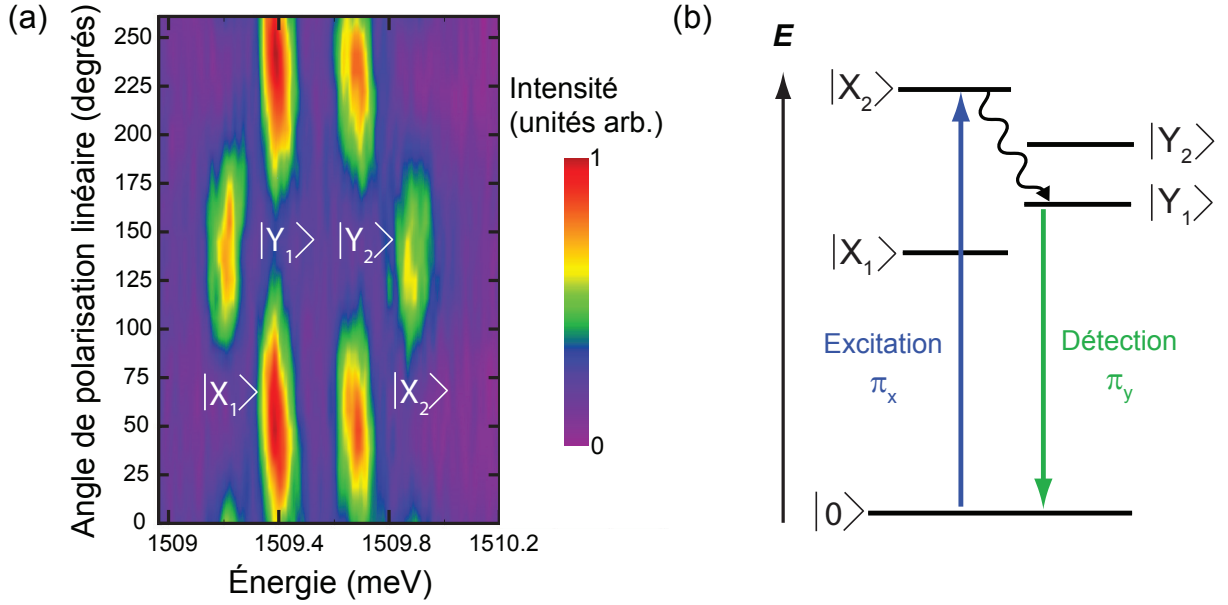


Figure 4.4 (a) Spectre de PL résolu en fonction de la polarisation linéaire de la paire d'azote de symétrie C_{2v} étudiée, obtenu à l'aide d'une excitation non-résonante à 780 nm. (b) Schématisation de la détection : la transition $|X_2\rangle$ est excitée en résonance et la fluorescence est mesurée via $|Y_1\rangle$, en polarisation croisée.

La figure 4.4 (b) présente l'approche employée pour détecter la fluorescence. L'état $|X_2\rangle$ est excité de façon résonante avec le laser Ti-Sapphire. La fluorescence est détectée à l'énergie de la transition $|Y_1\rangle \rightarrow |0\rangle$, puisqu'il s'agit de la transition polarisée orthogonalement au laser d'excitation dont l'énergie est la plus éloignée de celle du laser. Comme au chapitre 3, la détection implique un transfert entre les niveaux excitoniques.

La figure 4.5 démontre qu'il est possible de mesurer la fluorescence en excitant de façon résonante une des transitions composant la structure fine de l'exciton. En (a), les spectres de PL non-résonante détectés à 45° et 135° sont présentés. En (b), la PL est mesurée en excitant la paire d'azote avec le laser résonant. La position en énergie du laser est visible sur le spectre

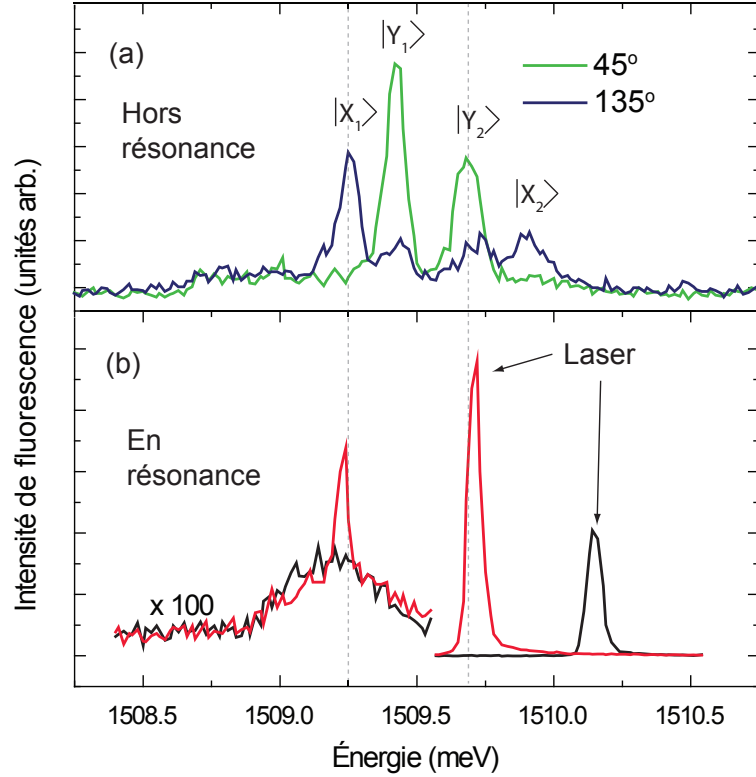


Figure 4.5 (a) Spectres de PL hors résonance détectés à 45° et 135°. (b) Lorsque le laser d'excitation est résonant avec $|Y_2\rangle$, la raie $|X_1\rangle$ est observée.

(bien que le laser soit éliminé par la fente, de la lumière parasite atteint tout de même le CCD à l'énergie du laser). La fenêtre de détection, c'est-à-dire la bande de longueurs d'onde qui n'est pas bloquée par les fentes du spectromètre, se situe entre 1509 et 1509.5 meV. Le spectre mesuré dans la fenêtre de détection est constitué de lumière parasite originant du laser, formant un pic d'une largeur d'environ 350 μeV . De plus, nous constatons que lorsque le laser est placé en résonance avec la transition $|Y_2\rangle$, un pic étroit à l'énergie de $|X_1\rangle$ est clairement observable. Notons que des résultats similaires ont été obtenus en excitant les quatre transitions et en détectant le spectre en polarisation croisée.

Pour confirmer que la PL observée en excitant avec le laser Ti-Sapphire provient bien d'un processus résonant, la fluorescence de la transition $|Y_1\rangle$ a été mesurée en balayant la position du laser d'excitation autour de l'énergie de $|X_2\rangle$, soit 1509.9 meV. La puissance d'excitation est de 800 nW. L'intensité de fluorescence est présentée à la figure 4.6 (a). Cette intensité est bien décrite par une fonction lorentzienne (illustrée en (a)) ou gaussienne ayant une pleine largeur à mi-hauteur de 70 ± 20 μeV . Puisque la largeur de raie du laser est inférieure à 20 μeV , ce qui est bien inférieur à la raie mesurée, il est possible de conclure que l'état $|X_2\rangle$ a une largeur de raie de 70 ± 20 μeV . Cette largeur de raie est en accord avec la largeur de

$60 \mu\text{eV}$ mesurée en émission et présentée à la figure 4.6 (c). Ces deux valeurs sont légèrement inférieures à la largeur de $120 \mu\text{eV}$ ajustée sur le spectre hors-résonance présenté à la figure 4.5 (a). Puisqu'une largeur de raie élevée correspond à un temps de cohérence de l'exciton court, une diminution de la largeur de raie lorsque l'excitation est résonante peut être associée à une augmentation du temps de cohérence de l'exciton. Or, puisque l'excitation résonante ne crée pas de porteurs de charge dans le semi-conducteur (l'énergie du laser ne permet pas d'exciter la bande interdite), le bruit de charge dans l'environnement de l'exciton devrait diminuer lors d'une excitation résonante, ce qui pourrait expliquer cette augmentation du temps de cohérence.

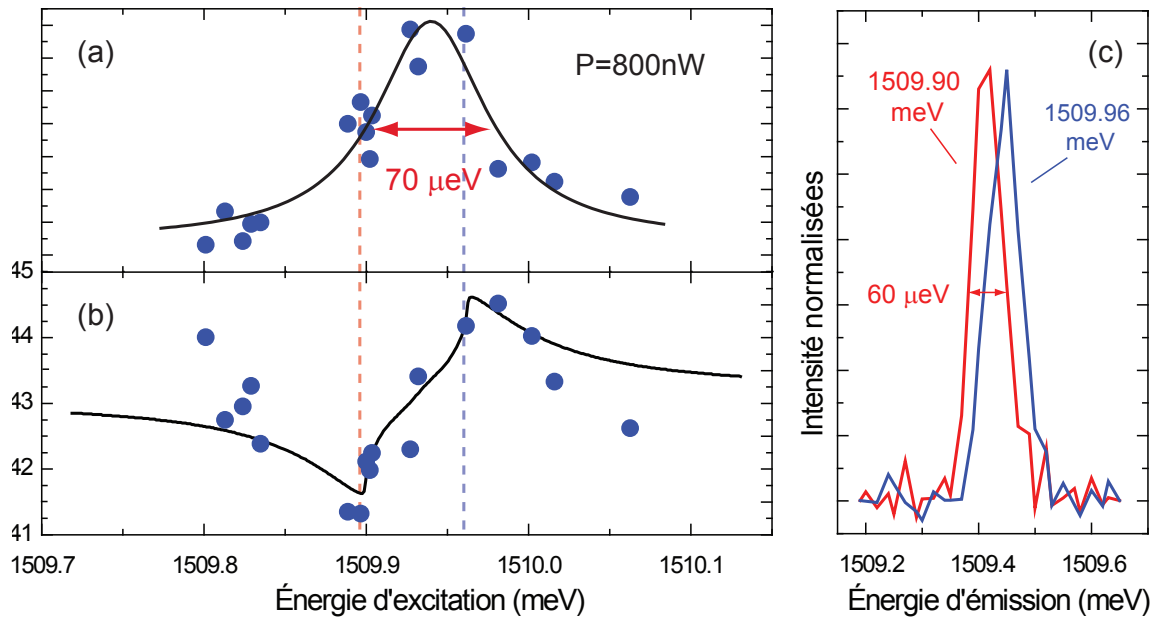


Figure 4.6 Effets d'un balayage de l'excitation sur la fluorescence en résonance. La puissance d'excitation est de 800 nW . (a) Intensité de fluorescence de la transition $|Y_1\rangle$ lorsque l'énergie du laser est balayée autour de la transition $|X_2\rangle$. L'intensité est bien décrite par une lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur est de $70 \mu\text{eV}$. (b) Énergie d'émission de $|Y_1\rangle$ en fonction de l'énergie d'excitation. Une variation de $30 \mu\text{eV}$ de l'énergie d'émission est observable lorsque le laser balaie l'état $|X_2\rangle$. Le trait plein est calculé. (c) Spectres de PL pour une excitation à 1509.92 meV et 1509.96 meV . Les énergies d'émission extraites ces deux spectres sont identifiées en (b) par des traits tiretés. Une variation de l'énergie d'émission de $30 \mu\text{eV}$ est résolue. La largeur à mi-hauteur des raies d'émission est de $60 \mu\text{eV}$.

Il est intéressant de constater à la figure 4.6 (b) que lorsque l'énergie d'excitation est balayée, l'énergie d'émission de la transition $|Y_1\rangle$ varie de façon significative (l'origine du trait plein est discuté plus bas). À la figure 4.6 (c), une différence d'énergie d'émission de $30 \mu\text{eV}$ est observable lorsque l'énergie du laser d'excitation passe de 1509.92 meV à 1509.96 meV ,

confirmant que la variation d'énergie est bien résolue à l'aide du montage de micro-PL.

Nous émettons l'hypothèse que la variation d'énergie présentée à la figure 4.6 est associée au doublet d'Autler-Townes, qui n'est toutefois pas résolu puisque les transitions optiques provenant de l'état $|Y_1\rangle$ sont trop larges et la puissance d'excitation trop faible. Pour comprendre cette hypothèse, il est utile de simuler les spectres d'émission de l'état $|Y_1\rangle$ pour différents décalages Δ entre le laser et la transition $|0\rangle \rightarrow |X_2\rangle$. Ces spectres simulés sont présentés à la figure 4.7 : les énergies des pics sont calculées à partir de l'équation 4.3. Les intensités des deux transitions formant le doublet d'Autler-Townes sont données par la proportion de l'état de base $|0, n+1\rangle$ des deux états finaux habillés, puisque l'état $|Y_1\rangle$ ne peut se recombiner que vers l'état du vide $|0\rangle$. Ainsi, un pic a une intensité proportionnelle à $\cos^2 \theta$ et l'autre à $\sin^2 \theta$. La fréquence de Rabi utilisée pour calculer les spectres à la figure 4.7 est de $\Omega = 45 \mu\text{eV}/\hbar$. En (a), la largeur des raies d'émission est fixée à $\Delta E = 20 \mu\text{eV}$; puisqu'elle est inférieure à $\hbar\Omega$, le doublet d'Autler-Townes est clairement résolu. Toutefois, en (b), la largeur des raies est de $\Delta E = 60 \mu\text{eV}$ et comparable à $\hbar\Omega$; le doublet n'est donc plus résolu. Le décalage Δ cause dans ce cas un déplacement apparent de la seule raie d'émission pouvant être résolue. Ce déplacement apparent est illustré par le trait rouge et pourrait être à l'origine de la variation de l'énergie observée à la figure 4.6 (b).

Le trait plein à la figure 4.6 (b) a été calculé de la façon suivante : un ensemble de spectres similaires à ceux présentés à la figure 4.7 sont générées avec deux paramètres d'essai, le moment dipolaire μ et la largeur de raie ΔE . Rappelons que le moment dipolaire est lié à la puissance d'excitation de la façon suivante : $\hbar\Omega = \mu E_0 = \mu \sqrt{\frac{2P}{c n \epsilon_0 S}}$, où E_0 est l'amplitude du champ électrique du laser, $S \approx 10^{-12} \text{ m}^2$ est l'aire du faisceau laser sur l'échantillon et $P = 800 \text{ nW}$ est la puissance d'excitation. Puis, pour chaque décalage spectral, une seule gaussienne est ajustée au spectre généré afin d'extraire l'énergie d'émission. Cet ajustement sur les spectres théoriques a pour but de reproduire la façon dont les énergies sont extraites expérimentalement. Il est ainsi possible de tracer l'énergie d'émission en fonction de l'énergie d'excitation (qui est liée au décalage spectral).

Les paramètres utilisés pour tracer la courbe à la figure 4.6 (b) sont $\mu = 250 D$ et $\Delta E = 30 \mu\text{eV}$. Le moment dipolaire semble très élevé et la largeur de raie semble petite par rapport à la largeur de $70 \pm 20 \mu\text{eV}$ mesurée. Ces paramètres doivent toutefois être interprétés avec prudence puisqu'ils sont obtenus de façon plutôt indirecte. Tout de même, l'effet Stark AC explique de façon qualitative la variation d'énergie d'émission en fonction de l'énergie du laser.

Notons que d'autres effets pourraient être invoqués pour expliquer la variation de l'énergie d'émission en fonction de l'énergie d'excitation. Par exemple, l'excitation résonante pourrait

polariser les noyaux sous la fonction d'onde de l'exciton et modifier l'interaction hyperfine (cependant, ces effets nucléaires ne peuvent généralement pas être observés à champ nul) ou créer des charges dans l'environnement de la paire d'azote qui affectent son énergie. Toutefois, dans les deux cas, les variations d'énergie ne devraient pas dépendre du signe du décalage spectral Δ , contrairement à ce qui est observé à la figure 4.6. Il n'est toutefois pas impossible que la variation d'énergie provienne à la fois de l'effet Stark AC et d'un autre effet ne dépendant pas du signe du décalage spectral, ce qui pourrait expliquer la surévaluation du moment dipolaire.

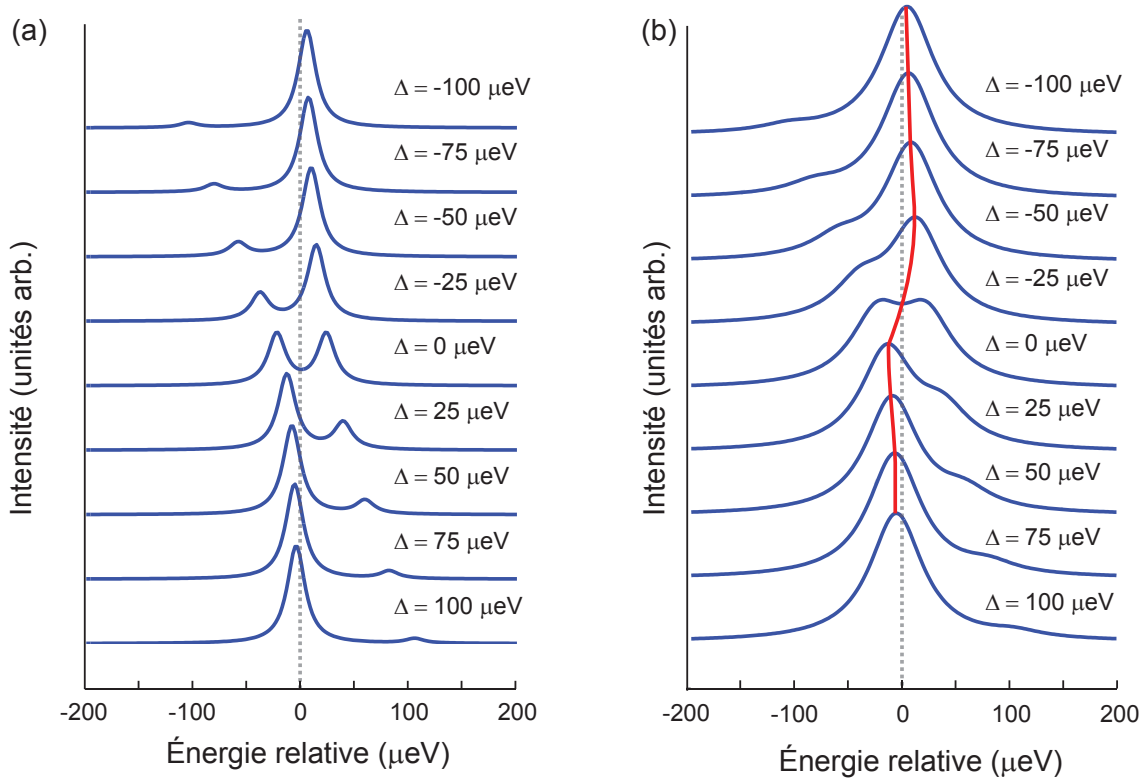


Figure 4.7 Simulation du spectre d'émission de l'état $|Y_1\rangle$ lorsque $|X_2\rangle$ est excité avec un décalage spectral Δ (données en posant $\hbar = 1$). Les énergies sont relatives à l'énergie de $|Y_1\rangle$ lorsque l'état du vide $|0\rangle$ n'est pas habillé ($E_{|Y_1\rangle}$). Les largeurs de raie sont de $\Delta E = 20 \mu\text{eV}$ en (a) et de $\Delta E = 60 \mu\text{eV}$ en (b). La fréquence de Rabi utilisée est de $\Omega = 45/\hbar \mu\text{eV}$.

Afin de résoudre le doublet d'Autler-Townes et d'évaluer directement le moment dipolaire de l'exciton, il est nécessaire d'augmenter la puissance d'excitation. La figure 4.8 (a) présente les spectres d'émission de l'état $|X_2\rangle$ pour plusieurs puissances d'excitation lorsque l'état $|Y_1\rangle$ est excité en résonance. Les données expérimentales sont représentées par des points et les traits continus sont calculés. Toutes les intensités sont normalisées pour mieux comparer les spectres. Nous constatons sur cette figure que la raie d'émission observée à basse puissance

s'élargit et tend à se dédoubler à puissance d'excitation élevée, ce qui est caractéristique du doublet d'Autler-Townes. Pour calculer les courbes théoriques, nous ajustons d'abord deux lorentziennes sur les données obtenues avec la puissance la plus élevée, soit $5 \mu\text{W}$. Les largeurs de raie obtenues sont de $60 \mu\text{eV}$, en accord avec les largeurs mesurées à la figure 4.6. À partir du rapport des intensités et de l'écart en énergie entre les deux raies, il est possible d'extraire les paramètres Ω et Δ en utilisant les équations 4.2 et 4.3. Nous obtenons un moment dipolaire de $\mu = 106 \text{ D}$ à partir de Ω et un décalage spectral de $\hbar\Delta = -14 \mu\text{eV}$. Quoique le moment dipolaire semble très élevé, cette valeur demeure raisonnable étant donné que de fortes variations du moment dipolaire ont été mesurées au chapitre précédent.

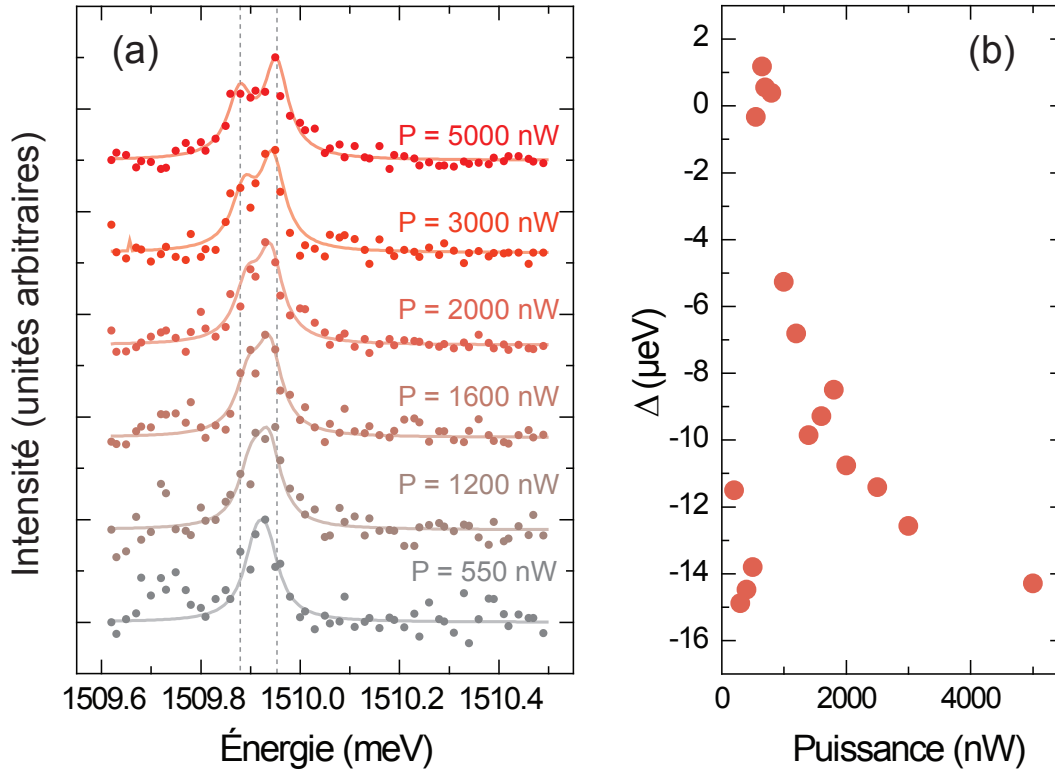


Figure 4.8 (a) Spectres de fluorescence normalisés de la transition $|X_2\rangle$ pour différentes puissances d'excitation lorsque $|Y_1\rangle$ est excitée en résonance. Les cercles sont les données expérimentales et les traits continus sont calculés. Les traits pointillés permettent de visualiser l'élargissement de la raie d'émission à haute puissance. (b) Décalage spectral en fonction de la puissance d'excitation, montrant que l'énergie du laser fluctue d'une mesure à l'autre. L'axe des ordonnées est en unités de $\hbar = 1$.

En connaissant le moment dipolaire de l'exciton et le décalage spectral à $P = 5 \mu\text{W}$, les spectres pour toutes les autres puissances d'excitation peuvent être calculés. D'une part, la fréquence Ω varie proportionnellement à la racine carrée de la puissance et peut facilement être déduite. D'autre part, le décalage spectral peut être trouvé en mesurant l'énergie du laser

pour chaque spectre et en comparant cette énergie à celle mesurée lorsque $P = 5 \mu\text{W}$; la figure 4.8 (b) montre les décalages ainsi déduits en fonction de la puissance. Nous remarquons que le laser fluctue légèrement d’une mesure à l’autre, mais Δ demeure relativement faible par rapport à la largeur de raie et la fréquence de Rabi à puissance élevée. Les traits pleins en (a) sont donc calculés à partir des valeurs de Ω et Δ déduites. Les spectres théoriques reproduisent de façon satisfaisante les données expérimentales pour toutes les puissances d’excitation, ce qui indique fortement que des états excitoniques habillés sont observés.

Notons qu’un élargissement de la raie d’émission à haute puissance tendant à un dédoublement a également été observé en excitant la transition $|Y_2\rangle$, mais n’a pas été observé en excitant les transitions $|X_1\rangle$ et $|Y_1\rangle$. Ceci est attribué à la difficulté d’ajuster la longueur d’onde d’excitation précisément en résonance avec ces deux transitions à cause des fluctuations du laser. Celui-ci dérive en effet dans le temps vers des longueurs d’onde où il est plus stable, rendant certaines longueurs d’onde inatteignables. Or, lorsque le laser n’est pas résonant, il peut devenir difficile de mesurer le doublet d’Autler-Townes, puisque l’intensité d’un des deux pics diminue considérablement, tel qu’illustré à la figure 4.7. Notons par ailleurs que lorsque la puissance d’excitation augmente, le bruit laser devient considérable et il devient difficile d’observer clairement le spectre de fluorescence en résonance. C’est pourquoi aucun spectre n’est présenté au-delà de $5 \mu\text{W}$.

Par ailleurs, nous avons tenté de reproduire les données présentées dans cette section sur d’autres paires d’azote de symétrie C_{2v} , toutefois sans succès. Il est possible que la difficulté à reproduire ces résultats soit liée au moment dipolaire particulièrement élevé de la paire présentée. En effet, pour observer la fluorescence en résonance d’un exciton dont le moment dipolaire est plus faible, la puissance d’excitation doit nécessairement être plus élevée, ce qui augmente la lumière parasite provenant du laser. Le rapport signal sur bruit n’est donc possiblement favorable que lorsque le moment dipolaire de l’exciton est très élevé. Il est également possible que le laser résonant crée un déplacement en énergie des raies excitoniques en créant des charges dans l’environnement du centre isoélectronique [110, 111]. Il pourrait alors être difficile de placer le laser parfaitement en résonance, ce qui aurait pour effet de diminuer considérablement la fluorescence. Ce déplacement en énergie est possiblement moins critique pour le centre présenté étant donné que les raies excitoniques sont particulièrement larges.

En résumé, la variation de l’énergie d’émission en fonction de l’énergie d’excitation et le dédoublement apparent du spectre d’émission présentés dans cette section sont deux fortes indications que des états habillés peuvent être observés dans les centres isoélectroniques. Toutefois, pour confirmer cette affirmation, des modifications à la méthodologie expérimentale

semblent nécessaires. En effet, il serait désirable de 1) augmenter la résolution du système pour mieux résoudre le doublet d'Autler-Townes et de 2) réduire la lumière parasite provenant du laser pour pouvoir mesurer le spectre de fluorescence en résonance pour des puissances d'excitation supérieures à $5 \mu\text{W}$. Or, il serait possible d'augmenter la résolution en énergie du système utilisé en plaçant un interféromètre de Fabry-Pérot devant le spectromètre ou à sa sortie. Pour réduire la lumière parasite provenant du laser, une détection synchrone pourrait être utilisée. Pour ce faire, deux lasers seraient nécessaires : un laser résonant, modifiant les niveaux d'énergie, et un laser non-résonant, d'énergie supérieure à la bande interdite du GaAs et modulé à une fréquence ω_s . La fluorescence serait alors détectée à la fréquence de modulation pour éliminer le laser résonant. Ce type d'expérience a déjà été réalisé dans les boîtes quantiques [112] et devrait pouvoir être adapté aux centres isoélectroniques. L'utilisation d'un laser dont la raie d'émission est beaucoup plus étroite que la fréquence de Rabi (de l'ordre de quelques centaines de MHz) et dont la fréquence peut être accordée avec une précision comparable à sa largeur de raie serait également souhaitable pour mieux caractériser l'effet d'un décalage spectral sur le spectre d'émission.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, la fluorescence d'excitons liés à des centres isoélectroniques a été présentée lorsque le système est excité par un laser résonant et continu. Lorsque la puissance du laser résonant est suffisamment élevée, un doublet apparaît dans le spectre de fluorescence. L'apparition de ce doublet a été attribué à l'effet Stark AC ayant pour effet d'habiller les états excitoniques. Un moment dipolaire excitonique de 106 D a été déterminé à partir de ce doublet. Toutefois, de nouvelles expériences seront nécessaires pour confirmer que le doublet d'Autler-Townes peut être observé dans les centres isoélectroniques.

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'effet Stark AC peut être exploité dans le contexte de l'information quantique [60]. Cependant, la fluorescence en résonance présente également de nombreux intérêts fondamentaux. Par exemple, elle a permis la caractérisation de l'interaction des boîtes quantiques avec leur environnement [123]. De plus, de la lumière comprimée provenant de la fluorescence en résonance d'une boîte quantique a récemment été mesurée [124]. L'étude de l'effet Stark AC et de la fluorescence en résonance des centres isoélectroniques pourrait donc s'avérer une avenue de recherche intéressante dans les années à venir.

CHAPITRE 5 CONTROLE COHÉRENT D'UN SPIN À L'AIDE D'EXCITONS CHARGÉS TROUS LOURDS ET TROUS LÉGERS

Le spin d'un électron ou d'un trou lié à une structure quantique représente un système à deux niveaux plus prometteur qu'un exciton pour définir des qubits stationnaires puisqu'il possède des temps de vie et de cohérence plus élevés. De plus, il est possible d'intriquer l'état du spin avec l'état de polarisation d'un photon [32–34]. Afin de contrôler optiquement l'état d'un spin électronique, un processus Raman stimulé peut être utilisé dans la mesure où les deux états de spin sont connectés à un même niveau excité par une transition optique. Un tel système sera identifié comme un système Λ et est illustré à la figure 5.1 (a).

Dans les boîtes quantiques, un système Λ peut être défini entre les états de spin d'un porteur de charge et un exciton chargé en appliquant un champ magnétique perpendiculairement à l'axe optique, c'est-à-dire en configuration de Voigt. Ce système a pavé la voie à de nombreuses démonstrations impressionnantes : le contrôle cohérent du spin d'un électron [29], du spin d'un trou [30] et l'intrication entre un spin électronique et un photon [32–34]. Toutefois, un problème demeure étant donné l'incompatibilité de la configuration de Voigt avec une lecture du spin en un essai (*single-shot readout*). Cette lecture nécessite une transition de recyclage qui n'est disponible qu'en configuration de Faraday, pour laquelle le champ magnétique appliqué est parallèle à l'axe optique [31].

Dans ce chapitre, nous allons démontrer qu'un système comme les centres isoélectroniques, présentant des trous lourds et des trous légers quasi-dégénérés, permet de résoudre cette incompatibilité en offrant dans la même configuration du champ magnétique :

- un système Λ permettant l'initialisation et le contrôle du qubit ; et
- une transition de recyclage, permettant sa lecture en un essai.

Nous allons d'abord décrire la problématique en présentant les règles de sélection des excitons chargés dans un système ne liant que des trous lourds. Puis, nous allons démontrer sous quelles conditions les règles de sélection d'un système où les trous lourds et les trous légers sont mélangés permettent l'initialisation, le contrôle et la lecture du spin. Finalement, nous allons décrire ces trois étapes lorsque ces conditions sont rencontrées.

5.1 Définitions

Définissons d'abord deux concepts qui seront abordés dans ce chapitre, soit les transitions Raman stimulées et la lecture en un essai via une transition de recyclage.

5.1.1 Transition Raman stimulée

Il est possible de tirer profit du système Λ présenté à la figure 5.1(a) pour contrôler l'état d'un qubit, défini par les états $|0\rangle$ et $|1\rangle$, via une transition Raman stimulée. Nous allons dériver ici l'hamiltonien de couplage entre ces niveaux. Plaçons l'état $|0\rangle$ à une énergie nulle, l'état $|1\rangle$ à l'énergie $\hbar\delta_e$ et l'état $|2\rangle$ à l'énergie $\hbar\omega_e$. Les états $|0\rangle$ et $|2\rangle$ sont couplés à une fréquence de Rabi Ω_0 par un laser de fréquence ω_0 dont le décalage spectral est $\Delta_0 = \omega_e - \omega_0$. Les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ sont couplés à une fréquence de Rabi Ω_1 par un laser de fréquence ω_1 dont le décalage spectral est $\Delta_1 = \omega_e - \omega_1 - \delta_e$.

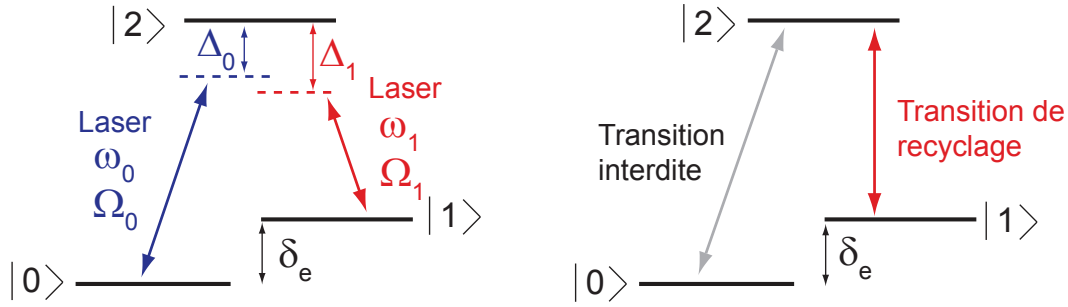


Figure 5.1 (a) Système Λ pour lequel deux niveaux sont couplés indirectement par un état excité (sur le schéma, $\hbar = 1$). (b) Système permettant une transition de recyclage pour lequel un seul des deux niveaux de basse énergie est couplé à l'état excité $|2\rangle$.

L'hamiltonien du système, dans l'approximation du référentiel tournant est

$$H_s = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -\Omega_0^* e^{i\omega_0 t} \\ 0 & 2\delta_e & -\Omega_1^* e^{i\omega_1 t} \\ -\Omega_0 e^{-i\omega_0 t} & -\Omega_1 e^{i\omega_1 t} & 2\omega_e \end{pmatrix}. \quad (5.1)$$

Nous pouvons exprimer cet hamiltonien dans la représentation d'interaction en définissant $\delta = \Delta_0 - \Delta_1$ et $\Delta = \frac{\Delta_0 + \Delta_1}{2}$. Pour ce faire, nous allons effectuer une transformation unitaire en suivant la même procédure qu'au chapitre 3. Pour éliminer la dépendance temporelle de l'hamiltonien, nous posons

$$H_s = H_0 + H_1 = \hbar \begin{pmatrix} \delta/2 & 0 & 0 \\ 0 & \delta_e - \delta/2 & 0 \\ 0 & 0 & \omega_e - \Delta \end{pmatrix} + \hbar \begin{pmatrix} -\delta/2 & 0 & -\frac{\Omega_0^*}{2} e^{i\omega_0 t} \\ 0 & \delta/2 & -\frac{\Omega_1^*}{2} e^{i\omega_1 t} \\ -\frac{\Omega_0}{2} e^{-i\omega_0 t} & -\frac{\Omega_1}{2} e^{i\omega_1 t} & \Delta \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

et effectuons la transformation unitaire $H_I = e^{iH_0 t/\hbar} H_1 e^{-iH_0 t/\hbar}$. L'hamiltonien d'interaction devient donc

$$H_I = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -\delta & 0 & -\Omega_0^* \\ 0 & \delta & -\Omega_1^* \\ -\Omega_0 & -\Omega_1 & 2\Delta \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

L'évolution temporelle du système est donnée par

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_I}{\partial t} = H_I \Psi_I, \quad (5.4)$$

où $|\Psi_I\rangle = c_0 |0\rangle + c_1 |1\rangle + c_2 |2\rangle$. Cette dernière équation peut s'écrire explicitement de la façon suivante

$$\dot{c}_0(t) = i\frac{\Omega_0^*}{2} c_2(t) + i\frac{\delta}{2} c_0(t) \quad (5.5)$$

$$\dot{c}_1(t) = i\frac{\Omega_1^*}{2} c_2(t) - i\frac{\delta}{2} c_1(t) \quad (5.6)$$

$$\dot{c}_2(t) = i\frac{\Omega_0}{2} c_0(t) + i\frac{\Omega_1}{2} c_1(t) - i\Delta c_2(t) \quad (5.7)$$

Il est possible de simplifier ce système d'équations en effectuant une élimination adiabatique du niveau supérieur $|2\rangle$ [125] : si $\Delta \gg \Omega_{0,1}$, la population du niveau $|2\rangle$ ne changera que très peu dans le temps, car ce niveau sera très faiblement excité, ce qui permet de poser $\dot{c}_2(t) \simeq 0$. Il est alors possible de réécrire l'hamiltonien effectif du système dans le sous-espace défini par les états $|0\rangle$ et $|1\rangle$ de la façon suivante

$$H_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} -\frac{\delta}{2} - \frac{|\Omega_0|^2}{4\Delta} & -\frac{\Omega_0^* \Omega_1}{4\Delta} \\ -\frac{\Omega_1^* \Omega_0}{4\Delta} & \frac{\delta}{2} - \frac{|\Omega_1|^2}{4\Delta} \end{pmatrix}. \quad (5.8)$$

Nous définissons la fréquence de Rabi effective $\Omega_{\text{eff}} = \frac{\Omega_0 \Omega_1^*}{2\Delta}$. Dans le cas particulier où $|\Omega_0|^2 = |\Omega_1|^2$, en soustrayant les termes diagonaux communs qui ne font que décaler de la même

énergie les deux niveaux, nous obtenons l'hamiltonien effectif

$$H_{\text{eff}} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -\Omega_{\text{eff}}^* \\ -\Omega_{\text{eff}} & 2\delta \end{pmatrix}. \quad (5.9)$$

Cet hamiltonien effectif a la même forme que l'hamiltonien 3.8 décrivant l'évolution d'un système à deux niveaux excité en résonance. Ainsi, il est possible de générer des oscillations de Rabi entre les deux niveaux de basse énergie d'un système Λ sans jamais exciter de populations dans l'état $|2\rangle$, dans la mesure où l'approximation adiabatique est satisfaite. L'état $|2\rangle$ ne sert que d'intermédiaire au contrôle cohérent du qubit. Puisque le temps de cohérence de l'exciton chargé est très faible et limité par l'émission spontanée, il est désirable de ne pas créer de populations dans cet état.

Évaluons finalement l'effet du décalage δ sur les oscillations de Rabi. Dans le cas où un seul laser excite le système, $\omega_0 = \omega_1 = \omega_L$ et $\Delta_0 - \Delta_1 = \delta = \delta_e$. Le décalage en énergie entre les niveaux $|0\rangle$ et $|1\rangle$ cause une rotation imparfaite sur la sphère de Bloch, c'est-à-dire autour d'un axe différent de l'axe x , tel qu'illustré à la figure 3.1. Il est donc impossible dans ce cas de placer le système parfaitement dans l'état $|1\rangle$ s'il est initialement dans l'état $|0\rangle$. Toutefois, si $\Omega_{\text{eff}} \gg \delta_e$, la rotation se fait approximativement autour de x et δ_e n'a que peu d'importance. Notons par ailleurs qu'une différence entre les deux fréquences de Rabi ($|\Omega_0|^2 \neq |\Omega_1|^2$) aura le même effet qu'un décalage spectral δ_e .

Pour générer l'état $|1\rangle$ à partir de l'état $|0\rangle$, une alternative est d'utiliser deux lasers pour lesquels $\Delta_0 = \Delta_1$. Dans ce cas, $\delta = 0$ et l'hamiltonien 5.9 décrit une rotation sur la sphère de Bloch autour de l'axe x . Toutefois, il est plus difficile expérimentalement d'utiliser deux lasers.

5.1.2 Lecture en un essai

La lecture d'un qubit est généralement réalisée en répétant une expérience plusieurs fois pour obtenir un signal mesurable et proportionnel à l'état final du qubit. Par exemple, la lecture du qubit excitonique au chapitre 3 est une mesure statistique puisqu'elle a été réalisée en répétant la séquence de rotation de Rabi et d'émission pendant plusieurs minutes. Pour réaliser une lecture du qubit en un essai, celui-ci ne doit être préparé qu'une seule fois, ce qui est beaucoup plus restreignant. Toutefois, cette lecture est bien plus pratique puisqu'elle permet d'obtenir le résultat d'une opération quantique sans la répéter.

Pour lire optiquement un qubit en un essai, il est nécessaire de générer un signal de plusieurs centaines de photons, étant donné la difficulté d'extraire efficacement les photons d'un

échantillon et l'efficacité limitée des détecteurs. Pour ce faire, une transition de recyclage doit être disponible dans le système considéré. Une transition de recyclage survient lorsqu'un état excité n'est couplé qu'à un des deux états propres du qubit, tel qu'illustré à la figure 5.1 (b). Dans ce cas, en excitant de façon résonante cette transition, il est possible de générer plusieurs cycles de Rabi sans que le qubit ne change d'état. La lecture se fait comme suit : si le qubit se trouve dans l'état $|1\rangle$ illustré à la figure 5.1 (b), plusieurs photons sont diffusés par émission spontanée lors des cycles de Rabi ; si toutefois il se trouve dans l'état $|0\rangle$, aucun photon n'est diffusé. La transition de recyclage permet donc de projeter le qubit sur l'état $|1\rangle$.

5.2 Règles de sélection d'un système trous lourds

Examinons maintenant la raison pour laquelle un système Λ et une transition de recyclage ne peuvent être obtenus simultanément dans un système ne liant que des trous lourds. La figure 5.2 présente la polarisation des transitions optiques entre un exciton chargé négativement et un électron lorsqu'un champ magnétique élevé est appliqué et que la séparation entre les états trous lourds et trous légers est importante. On considère que l'interaction des trous avec le champ magnétique est beaucoup plus grande qu'avec le champ cristallin de sorte que les états propres présentés sont les états propres du champ magnétique. Lors d'une transition optique, le trou formant l'exciton chargé se recombine avec un des deux électrons formant un singulet pour émettre un photon.

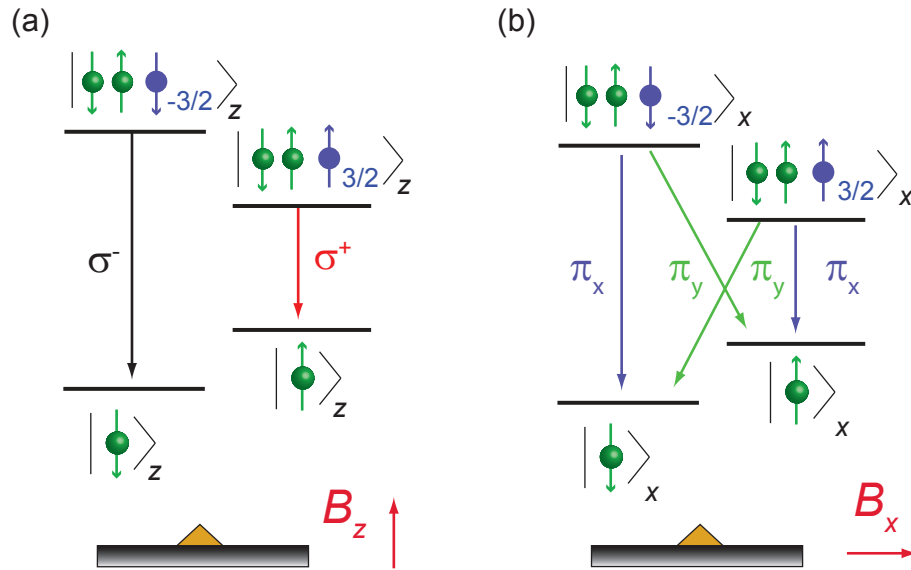


Figure 5.2 Règles de sélection pour un exciton chargé trous lourds en configuration (a) de Faraday et (b) de Voigt. Les polarisations circulaires sont dans le plan xy .

Pour déterminer la polarisation des transitions, nous calculons les éléments de matrice d'interaction dipolaire électrique $\langle \psi_i | \mathbf{r} | \psi_f \rangle$. L'état initial peut être écrit comme le produit de la fonction d'onde du trou et d'un singulet formé par les deux spins électroniques

$$|\psi_i\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow, \downarrow\rangle_z - |\downarrow, \uparrow\rangle_z) |\psi_h\rangle, \quad (5.10)$$

où $|\psi_h\rangle = Y_1^1 |\uparrow\rangle_z$ pour un trou ayant une projection du moment cinétique de $3/2$ et $|\psi_h\rangle = Y_1^{-1} |\downarrow\rangle_z$ pour un trou ayant une projection du moment cinétique $-3/2$. Ici, $\{|\uparrow\rangle_z, |\downarrow\rangle_z\}$ désignent les projections des spins des trous selon l'axe z ; $\{|\uparrow\rangle_z, |\downarrow\rangle_z\}$ désignent les projections des spins des électrons selon z ; et Y_i^j sont des harmoniques sphériques.

L'état final de la transition optique est composé de l'état du vide pour un exciton, présenté au chapitre 2, multiplié par l'état de spin de l'électron résiduel

$$|\psi_f\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow, \downarrow\rangle_z - |\downarrow, \uparrow\rangle_z) |\psi_e\rangle, \quad (5.11)$$

où $|\psi_e\rangle \in \{|\uparrow\rangle_z, |\downarrow\rangle_z\}$. Pour alléger la notation, nous désignerons les états initiaux seulement par la projection du moment cinétique du trou et les états finaux par la projection du spin de l'électron. Ainsi, $\psi_i \in \{|3/2\rangle_z, |-3/2\rangle_z\}$ et $\psi_f \in \{|\uparrow\rangle_z, |\downarrow\rangle_z\}$.

5.2.1 Configuration de Faraday

La configuration de Faraday est présentée à la figure 2.7 (a). On peut aisément démontrer que les transitions $|-3/2\rangle_z \rightarrow |\downarrow\rangle_z$ et $|3/2\rangle_z \rightarrow |\uparrow\rangle_z$ ont respectivement des polarisations circulaires gauche et droite. Les deux autres transitions sont interdites car elles ne conservent pas le moment cinétique total.

La configuration de Faraday ne permet donc pas le contrôle cohérent du spin électronique, car aucun système Λ n'est formé : les deux niveaux excités sont couplés à des niveaux électroniques différents. Toutefois, cette configuration permet la lecture du spin à l'aide de deux transitions possibles de recyclage.

5.2.2 Configuration de Voigt

Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à l'axe optique, les états propres sont $\{|3/2\rangle_x, |-3/2\rangle_x\}$ pour les excitons chargés et $\{|\uparrow\rangle_x, |\downarrow\rangle_x\}$ pour les électrons. Ces états s'écrivent dans la base $\{|3/2\rangle_z, |-3/2\rangle_z\}$ et $\{|\uparrow\rangle_z, |\downarrow\rangle_z\}$ de la façon suivante :

$$\begin{aligned}
|3/2\rangle_x &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|3/2\rangle_z + |-3/2\rangle_z) \\
|-3/2\rangle_x &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|3/2\rangle_z - |-3/2\rangle_z) \\
|\uparrow\rangle_x &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle_z + |\downarrow\rangle_z) \\
|\downarrow\rangle_x &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle_z - |\downarrow\rangle_z).
\end{aligned} \tag{5.12}$$

On peut alors facilement démontrer que quatre transitions sont permises dans cette configuration, polarisées linéairement selon x ou y , tel qu'illustré à la figure 5.2 (b). La configuration de Voigt offre ainsi un système double- Λ , c'est-à-dire que les deux niveaux d'excitons chargés sont connectés aux deux niveaux électroniques. Comme nous le verrons à la section 5.4, un tel système permet des rotations du spin de l'électron. Toutefois, aucune transition de recyclage ne peut être définie en configuration de Voigt.

5.3 Règles de sélection d'un système trous lourds et trous légers

Nous allons maintenant démontrer que des excitons chargés dans un système où les trous lourds et les trous légers sont quasi-dégénérés peuvent présenter à la fois des transitions de recyclage et un système double- Λ . Ceci est possible lorsqu'un champ magnétique suffisamment élevé est appliqué, supprimant le mélange entre les trous lourds et les trous légers induit par le champ cristallin. Pour déterminer l'importance du champ magnétique à appliquer, les états propres des trous seront calculés en symétrie C_s , qui est le groupe de symétrie des excitons chargés présentés au chapitre 6. Ce calcul peut aisément être adapté à des symétries plus élevées. Comme à la section précédent, l'état initial d'une transition optique est spécifié uniquement par le moment cinétique du trou alors que l'état final est défini par le spin de l'électron.

5.3.1 Hamiltoniens C_s

Tout comme dans les systèmes de plus haute symétrie, l'hamiltonien de champ cristallin ne s'écrit que dans la base des trous. En symétrie C_s , il inclut un invariant supplémentaire par rapport à la symétrie C_{2v} . Cette démonstration est présentée à l'annexe B. L'hamiltonien de champ cristallin s'écrit donc

$$H_{CF} = \sum_{x,y,z} v_i J_i^2 + v_{yz} \{J_y, J_z\}, \quad (5.13)$$

où $\{J_y, J_z\}$ est un anticommutateur et v_x, v_y, v_z et v_{yz} sont des coefficients. L'axe x est défini par le seul élément de symétrie du groupe ponctuel C_s (autre l'identité) : il est perpendiculaire au plan miroir. Les axes y et z ne sont pas définis uniquement en symétrie C_s , ils peuvent donc être choisis arbitrairement.

L'hamiltonien d'interaction avec le champ magnétique pour l'électron en symétrie C_s est le même qu'en symétrie C_{2v} (équation 2.7)

$$H_{Be} = \sum_{i=x,y,z} \mu_B g_i \sigma_i B_i, \quad (5.14)$$

où le terme de décalage diamagnétique a été retiré et sera entièrement inclus dans l'hamiltonien du trou. Bien qu'en symétrie C_s , l'hamiltonien du trou sous champ magnétique comporte de nombreux termes, nous allons utiliser la même approximation qu'à l'équation 2.8 et ne prendre que les termes en symétrie T_d . Cet hamiltonien s'écrit

$$H_{Bh} = \mu_B \sum_{i=x,y,z} (K J_i + L J_i^3) B_i + \gamma_{X^*} B^2, \quad (5.15)$$

où γ_{X^*} est le décalage diamagnétique de l'exciton chargé. À l'aide de ces hamiltoniens, les règles de sélection de l'exciton chargé seront dérivées dans deux limites différentes, soit lorsque le champ magnétique est nul et lorsqu'il est très grand par rapport au champ cristallin.

5.3.2 Règles de sélection à champ nul

Lorsque le champ magnétique est nul, les deux états électroniques sont dégénérés. Le champ cristallin lève quant à lui la dégénérescence entre les états de prédominance trous lourds et trous légers. L'hamiltonien du trou, sous forme matricielle, s'écrit dans la base $J_x = \{3/2, 1/2, -1/2, -3/2\}$ de la façon suivante

$$H_x = \begin{pmatrix} \delta_{1x} & 0 & \delta_{3x} - i\delta_4 & 0 \\ 0 & \delta_{2x} & 0 & \delta_{3x} - i\delta_4 \\ \delta_{3x} + i\delta_4 & 0 & \delta_{2x} & 0 \\ 0 & \delta_{3x} + i\delta_4 & 0 & \delta_{1x} \end{pmatrix}, \quad (5.16)$$

où $\delta_{1x} = \frac{3}{4}(3v_x + v_y + v_z)$, $\delta_{2x} = \frac{1}{4}(v_x + 7v_y + 7v_z)$, $\delta_{3x} = \frac{\sqrt{3}}{2}(v_y - v_z)$ et $\delta_4 = \sqrt{3}v_{yz}$. En diagonalisant cet hamiltonien, deux énergies propres doublement dégénérées sont obtenues,

séparées par $\delta_h = \sqrt{(\delta_{1x} - \delta_{2x})^2 + 4\delta_{3x}^2 + 4\delta_4^2}$, tel qu'illustré à la figure 5.3(a). Étant donné le mélange entre les trous lourds et les trous légers, les deux transitions illustrées ont une force d'oscillateur non nulle selon les axes x , y et z ; elles seront donc considérées comme étant non polarisées. Toutefois, dépendamment de l'orientation de l'axe optique du système et de l'importance du mélange entre les trous lourds et les trous légers, il est possible d'observer une polarisation linéaire préférentielle selon une direction donnée.

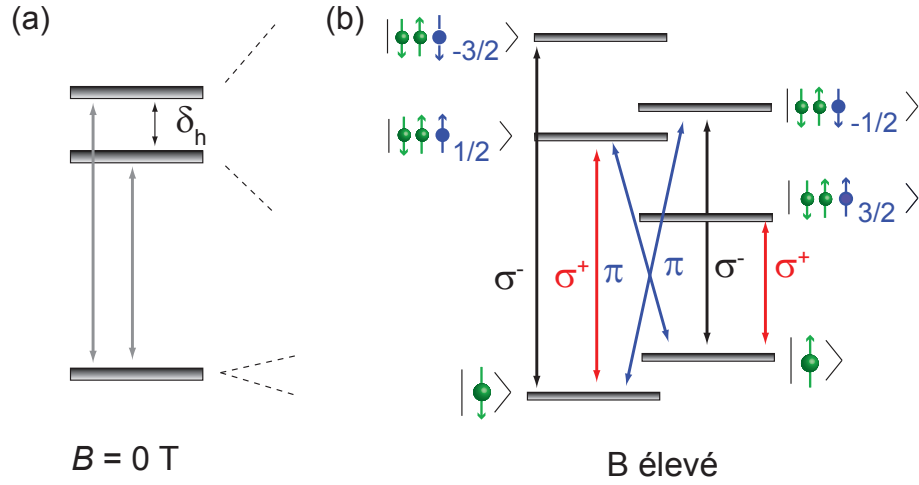


Figure 5.3 (a) Règles de sélection pour un exciton chargé à champ nul. Deux transitions non-polarisées sont possibles entre les 2 niveaux initiaux doublement dégénérés, séparés par une énergie δ_h , et l'état final doublement dégénéré. (b) Règles de sélection lorsque l'interaction des trous avec le champ magnétique domine l'interaction avec le champ cristallin. Deux transitions sont polarisées linéairement dans la direction du champ (π), quatre transitions sont polarisées circulairement dans le plan perpendiculaire au champ (σ^+ et σ^-) et deux transitions sont interdites.

Les états propres de l'hamiltonien 5.16 présentent un mélange trous lourds-trous légers plus ou moins important en fonction des paramètres de champ cristallin. Or, des transitions de recyclage sont possibles seulement lorsque ce mélange est très faible; dans ce cas, deux transitions impliquant les trous lourds sont interdites. L'application d'un champ magnétique permet de réduire de façon importante ce mélange.

5.3.3 Règles de sélection à champ magnétique élevé

Afin de minimiser le mélange entre les trous lourds et légers, le champ magnétique doit être appliqué selon un axe qui ne brise pas la symétrie spatiale de la nanostructure; dans le cas contraire, le champ mélangerait davantage les trous lourds et légers en introduisant des termes hors-diagonaux supplémentaires dans l'hamiltonien. Or, en symétrie C_s , seul un

champ appliqué selon l'axe x , l'axe perpendiculaire au plan miroir, respecte cette condition. Les règles de sélection et le mélange entre les trous lourds et les trous légers seront donc dérivés d'abord dans cette configuration.

Toutefois, nous considérerons également une autre configuration du champ magnétique qui pourrait minimiser le mélange entre les trous lourds et légers dans la mesure où le paramètre v_{yz} est petit par rapport aux autres paramètres de champ cristallin. Dans ce cas, la symétrie de la nanostructure est approximativement une symétrie C_{2v} et il est alors possible d'appliquer le champ magnétique dans trois directions différentes sans briser la symétrie spatiale. Nous définissons l'axe z comme l'axe minimisant $|\delta_{3z}| = |v_x - v_y|$, soit le seul paramètre hors-diagonal de l'hamiltonien en symétrie C_{2v} . Le mélange entre les trous lourds et légers sera évalué lorsqu'un champ magnétique est appliqué selon z . De par la définition de cet axe, il ne sera jamais avantageux d'appliquer le champ selon y .

Pour déterminer lequel des axes x ou z permet de minimiser le mélange entre les trous lourds et les trous légers, l'hamiltonien du champ magnétique et les règles de sélection de l'exciton chargé seront développés pour un champ appliqué selon ces deux axes. Seul l'hamiltonien des trous sera développé. L'hamiltonien qui agit sur les électrons ne comprend que l'interaction Zeeman et son effet est d'aligner les états propres du spin soit dans la direction du champ magnétique ou dans la direction opposée.

Champ appliqué selon x

Il est judicieux d'écrire l'hamiltonien du trou dans la base J_i , où i est l'orientation du champ magnétique. Lorsque le champ est appliqué selon x , l'hamiltonien s'exprime dans la base $J_x = \{3/2, 1/2, -1/2, -3/2\}$ de la façon suivante :

$$H_x = \begin{pmatrix} \delta_{1x} + \frac{12\alpha_x + 27\beta_x}{8} & 0 & \delta_{3x} - i\delta_4 & 0 \\ 0 & \delta_{2x} + \frac{4\alpha_x + \beta_x}{8} & 0 & \delta_{3x} - i\delta_4 \\ \delta_{3x} + i\delta_4 & 0 & \delta_{2x} - \frac{(4\alpha_x + \beta_x)}{8} & 0 \\ 0 & \delta_{3x} + i\delta_4 & 0 & \delta_{1x} - \frac{(12\alpha_x + 27\beta_x)}{8} \end{pmatrix}, \quad (5.17)$$

où $\alpha_x = \mu_B K B_x$ et $\beta_x = \mu_B L B_x$. Cet hamiltonien peut être diagonalisé analytiquement. En calculant les vecteurs propres, on peut montrer que dans la condition où $\left(\alpha_x + \frac{7\beta_x}{4}\right)^2 \gg \delta_{3x}^2 + \delta_4^2$, le champ magnétique est l'interaction dominante et les états propres des trous sont bien décrits par les états de la base J_x . Cette condition ignore les paramètres δ_{1x} et δ_{2x} , car ils sont considérés du même ordre de grandeur que les termes hors-diagonaux : s'ils étaient beaucoup plus grand que ces derniers, le système pourrait être considéré de symétrie C_{3v} ou D_{2d} . Nous discuterons de ces symétries plus bas.

Les règles de sélection dans la condition où le champ magnétique est l'interaction dominante sont obtenues de la même façon qu'à la section 5.2 et présentées à la figure 5.3 (b). Deux transitions impliquant les trous légers sont polarisées linéairement selon l'axe du champ magnétique. Deux autres transitions présentent des polarisations circulaires, une gauche et une droite (les plans de polarisations circulaires sont perpendiculaires au champ magnétique). Les excitons chargés trous légers forment donc un système double- Λ avec les niveaux de spin électroniques. Pour les trous lourds, deux transitions sont polarisées circulairement, gauche et droite, et deux transitions sont interdites.

Les règles de sélection obtenues pour les transitions provenant des états trous lourds sont bien différentes des règles de sélection obtenues à la section 5.2.2 pour un système où seuls les trous lourds sont considérés. En effet, dans le cas où les trous lourds et les trous légers sont largement séparés en énergie, toutes les transitions provenant des états trous lourds sont permises lorsqu'un champ est appliqué selon x . Ceci est dû à la contrainte séparant les trous lourds et les trous légers qui redéfinit les états propres du système. Or, lorsque le champ magnétique est beaucoup plus important que cette contrainte, comme c'est le cas ici, les états propres des trous s'écrivent plutôt

$$\begin{aligned}
|3/2\rangle_x &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(|3/2\rangle_z + \sqrt{3}|1/2\rangle_z + \sqrt{3}|-1/2\rangle_z + |-3/2\rangle_z \right) \\
|1/2\rangle_x &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-\sqrt{3}|3/2\rangle_z - |1/2\rangle_z + |-1/2\rangle_z + \sqrt{3}|-3/2\rangle_z \right) \\
|-1/2\rangle_x &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(\sqrt{3}|3/2\rangle_z - |1/2\rangle_z - |-1/2\rangle_z + \sqrt{3}|-3/2\rangle_z \right) \\
|-3/2\rangle_x &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(-|3/2\rangle_z + \sqrt{3}|1/2\rangle_z - \sqrt{3}|-1/2\rangle_z + |-3/2\rangle_z \right).
\end{aligned} \tag{5.18}$$

Ainsi, en théorie, en appliquant un champ magnétique selon x suffisamment important pour dominer l'effet d'une contrainte, les règles de sélection de la figure 5.3 seraient obtenues dans une boîte quantique de InAs/GaAs et des transitions de recyclage seraient possibles. Toutefois, en pratique, étant donné que la séparation entre les trous lourds et les trous légers dans ce système est de l'ordre de plusieurs dizaines de meV, ces champs magnétiques sont inatteignables.

Revenons aux règles de sélection d'un système où les trous lourds et les trous légers sont quasi-dégénérés. Les deux transitions interdites à haut champ magnétique permettent de définir une transition de recyclage à l'aide d'un exciton chargé trou lourd. Or, les forces d'oscillateur des transitions interdites ne sont pas complètement nulles puisqu'un faible mé-

lange trous lourds-trous légers subsiste à haut champ. La qualité des transitions de recyclage est donc définie par le rapport d'embranchement η_x , c'est-à-dire le rapport entre les forces d'oscillateur des transitions permises et interdites qui proviennent du même état trou lourd. En calculant les forces d'oscillateurs à l'aide des vecteurs propres de l'hamiltonien 5.17, le rapport d'embranchement s'écrit

$$\eta_x = \frac{3}{2} \left[\frac{\left(2\alpha_x + \frac{7}{2}\beta_x \pm (\delta_{1x} - \delta_{2x}) \right)^2}{\delta_{3x}^2 + \delta_4^2} \right]. \quad (5.19)$$

Notons que l'équation 5.19 n'est valide que lorsque le champ magnétique est dominant. Les deux valeurs possibles de η_x sont associées respectivement aux paires de transitions provenant des états $|3/2\rangle_x$ et $|-3/2\rangle_x$. Il existe donc une paire de transitions dont le rapport d'embranchement est plus élevé que l'autre. Pour déterminer laquelle des transitions est favorable, la figure 5.4 schématise l'énergie des quatre états de trous en fonction du champ magnétique. Lorsque le champ magnétique est nul, deux états sont de prédominance trous lourds (notés hh) et deux de prédominance trous légers (notés lh). À haut champ magnétique, les deux états d'énergie extrêmes sont des trous lourds, alors que les deux états d'énergie centraux sont des trous légers. L'état trou lourd pour lequel le rapport d'embranchement est maximal à champ élevé est celui qui était également de prédominance trous lourds à champ nul, illustré par un trait pointillé à la figure 5.4.

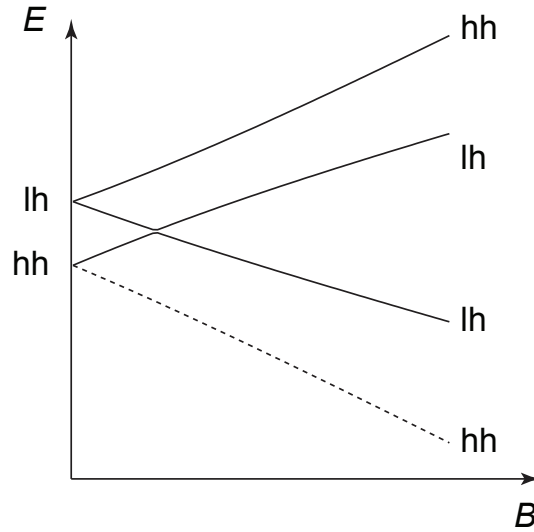


Figure 5.4 Évolution en énergie des quatre états de trous en fonction du champ magnétique. La transition de recyclage présentant le rapport d'embranchement le plus élevé implique l'état trou lourd à haut champ magnétique provenant d'un état de prédominance trou lourd à champ nul. Cet état est illustré par un trait pointillé.

Ainsi, en connaissant les paramètres de champ cristallin et les paramètres de Luttinger K et L , il est possible d'évaluer la grandeur du champ magnétique à appliquer pour atteindre le rapport d'embranchement souhaité. La lecture en un essai a été démontrée dans une boîte quantique à l'aide d'une transition de recyclage pour laquelle $\eta_x = 450$ [31].

Champ appliqué selon z

Lorsque le champ magnétique est appliqué selon l'axe z , l'hamiltonien s'écrit, dans la base $J_z = \{3/2, 1/2, -1/2, -3/2\}$ de la façon suivante :

$$H_z = \begin{pmatrix} \delta_{1z} + \frac{12\alpha_z + 27\beta_z}{8} & -i\delta_4 & \delta_{3z} & 0 \\ i\delta_4 & \delta_{2z} + \frac{4\alpha_z + \beta_z}{8} & 0 & \delta_{3z} \\ \delta_{3z} & 0 & \delta_{2z} - \frac{(4\alpha_z + \beta_z)}{8} & i\delta_4 \\ 0 & \delta_{3z} & -i\delta_4 & \delta_{1z} - \frac{(12\alpha_z + 27\beta_z)}{8} \end{pmatrix}, \quad (5.20)$$

où $\alpha_z = \mu_B K B_z$, $\beta_z = \mu_B L B_z$, $\delta_{1z} = \frac{3}{4}(3v_z + v_x + v_y)$, $\delta_{2z} = \frac{1}{4}(v_z + 7v_x + 7v_y)$ et $\delta_{3z} = \frac{\sqrt{3}}{2}(v_z - v_x)$. Cet hamiltonien ne peut pas être diagonalisé analytiquement. Toutefois, si les termes hors-diagonaux sont faibles par rapport aux termes diagonaux, c'est-à-dire dans la condition où $|\alpha_z/2 + \beta_z/8|$ et $|3\alpha_z/2 + 27\beta_z/8| \gg |\delta_{3z}|$ et $|\delta_4|$, les vecteurs propres sont bien décrits par les états de la base J_z . Le faible mélange résiduel entre les trous lourds et les trous légers peut être approximé par la théorie des perturbations. Ceci permet de trouver le rapport d'embranchement η_z pour les deux transitions de recyclage, qui s'écrit

$$\eta_z = \frac{3}{2} \left[\frac{\delta_4^2}{\alpha_z + \frac{13}{4}\beta_z \pm (\delta_{1z} - \delta_{2z})} + \frac{\delta_{3z}^2}{2\alpha_z + \frac{7}{2}\beta_z \pm (\delta_{1z} - \delta_{2z})} \right]^{-1}. \quad (5.21)$$

Les deux valeurs possibles de η_z sont de nouveau associées aux états initiaux $|3/2\rangle_z$ et $|-3/2\rangle_z$ et la valeur maximale est associée à la transition trous lourds provenant d'un état de prédominance trous lourds à champ nul.

Dans le cas où $\eta_z > \eta_x$, il est plus avantageux d'appliquer le champ magnétique selon l'axe z pour minimiser le mélange entre les trous lourds et les trous légers. Dans le cas contraire, le champ devrait être appliqué selon x .

Autres symétries

En résumé, en connaissant les paramètres v_x , v_y , v_z et v_{yz} d'une nanostructure, il est possible de déterminer l'orientation du champ magnétique optimisant la transition de recyclage du système. Tout le traitement de cette section s'est fait pour une structure de symétrie C_s . Les

simplifications suivantes surviennent lorsque la symétrie de la structure est plus élevée :

- **Symétrie C_{2v}**

En symétrie C_{2v} , $\delta_4 = 0$. Les expressions de η_x et de η_z deviennent équivalentes. Le champ doit être appliqué selon x ou z , dépendamment des valeurs de η_x et η_z .

- **Symétries C_{3v} et D_{2d}**

En symétrie C_{3v} et D_{2d} , les axes x et y sont équivalents. Ainsi, $\delta_{3z} = 0$ et $\delta_4 = 0$, ce qui fait que η_z tend vers l'infini. Il est donc théoriquement possible de définir une transition de recyclage à champ magnétique nul.

Un système de haute symétrie, pour lequel les trous lourds et les trous légers sont quasi-dégénérés et liant des excitons chargés serait donc idéal pour contrôler le spin d'un électron et pour le lire via une transition de recyclage robuste.

5.4 Initialisation, contrôle et lecture du spin

Nous allons maintenant décrire comment il est possible de tirer profit des règles de sélection d'un exciton chargé liant des trous lourds et des trous légers afin d'initialiser, de contrôler de façon cohérente et de lire un qubit de spin en un essai.

Afin de simplifier la discussion, nous ne considérerons que le cas où le champ magnétique est appliqué selon la direction x , tel qu'illustré à la figure 5.5. Le contrôle du spin est possible si l'axe optique du système est perpendiculaire au champ magnétique, selon z ; dans ce cas, les quatre transitions trous légers sont accessibles optiquement. Toute la discussion qui suit est également valide pour un champ magnétique appliqué selon z ; toutefois, dans ce cas, l'axe x devrait être l'axe optique.

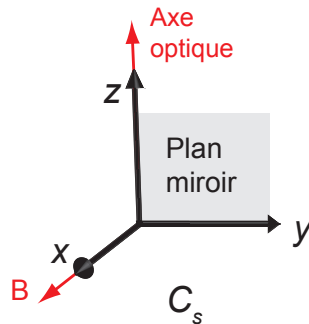


Figure 5.5 Configuration de Voigt permettant l'initialisation, le contrôle et la lecture du spin. Le champ magnétique est appliqué selon x , l'axe perpendiculaire au plan miroir en symétrie C_s et l'axe optique est selon z .

5.4.1 Initialisation

L'initialisation du spin d'un électron [28, 29] ou du spin d'un trou [30] par l'entremise d'excitons chargés liant des trous lourds a été démontrée expérimentalement dans les boîtes quantiques. De façon similaire, nous démontrerons qu'il est possible d'initialiser un spin en excitant de façon résonante une des transitions impliquant des trous légers. Les deux systèmes Λ impliquant les trous légers, celui formé par l'état $|-1/2\rangle_x$ et celui formé par l'état $|1/2\rangle_x$, peuvent être exploités de façon identique ; l'état $|-1/2\rangle_x$ sera choisi, tel que montré à la figure 5.6 (a). Des deux transitions provenant de cet état, une possède une force d'oscillateur (ou encore un taux d'émission spontanée Γ) deux fois plus élevée que l'autre. Afin de minimiser le temps d'initialisation du spin, la transition ayant un taux de d'émission de $\Gamma/2$ sera excitée. Or, la transition $|-1/2\rangle_x \rightarrow |\uparrow\rangle_x$ est polarisée circulairement dans le plan yz lorsque le champ est appliqué selon x . Puisque l'axe z est l'axe optique, le laser d'initialisation doit être polarisé linéairement selon y (π_y).

L'émission spontanée est responsable de l'initialisation du spin. Lorsqu'un exciton chargé est créé par le laser continu d'initialisation, il peut émettre un photon et relaxer vers les états $|\downarrow\rangle_x$ ou $|\uparrow\rangle_x$. Si l'exciton chargé relaxe vers $|\uparrow\rangle_x$, il peut être excité de nouveau par le laser ; s'il relaxe vers $|\downarrow\rangle_x$, le laser n'a plus d'effet, car il n'est plus résonant avec aucune transition et le spin est initialisé.

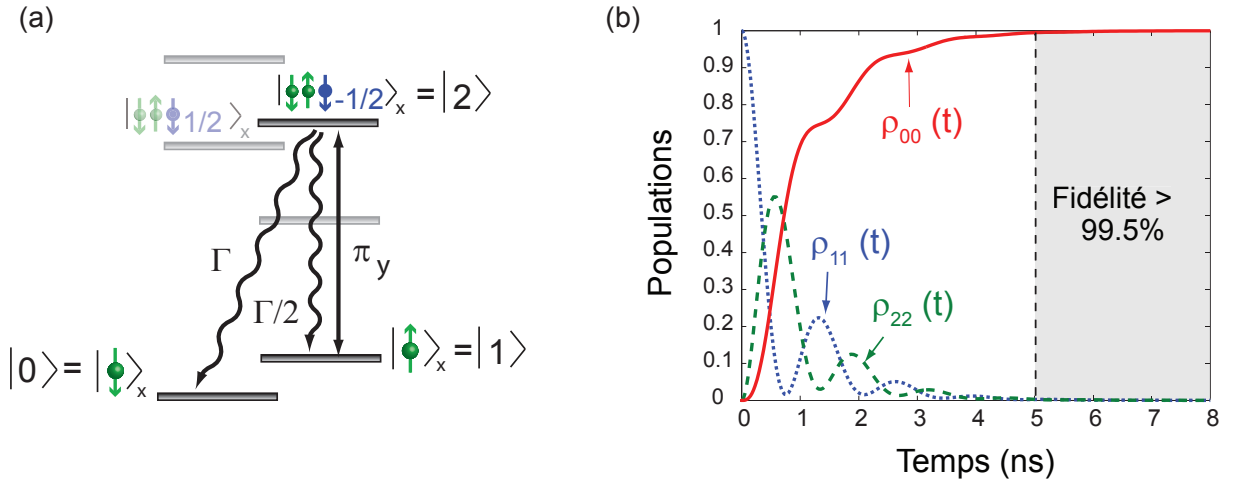


Figure 5.6 (a) Pour initialiser le spin, la transition $|\uparrow\rangle_x \rightarrow |-1/2\rangle_x$ est excitée par un laser continu polarisé linéairement selon y . L'émission spontanée, dont le taux est de Γ , initialise éventuellement le système dans l'état $|\downarrow\rangle_x$ (b) Le calcul théorique des populations démontre que le spin est initialisé en 5 ns avec une fidélité supérieure à 99.5%. Le trait plein représente la population ρ_{00} de l'état $|0\rangle$, le trait pointillé est la population ρ_{11} de l'état $|1\rangle$, et le trait tireté est associée à ρ_{22} , la population de $|2\rangle$. La fidélité de l'initialisation est donnée par ρ_{00} .

Le processus d'initialisation peut être analysé mathématiquement en utilisant le formalisme de la matrice densité. Définissons les trois niveaux d'intérêts par $|0\rangle = |\downarrow\rangle_x$, $|1\rangle = |\uparrow\rangle_x$ et $|2\rangle = |-1/2\rangle_x$ pour simplifier la notation. Le laser couple les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ à la fréquence de Rabi Ω et l'hamiltonien du système, dans la représentation d'interaction et l'approximation du référentiel tournant, s'écrit

$$H_I = \hbar \begin{pmatrix} -\delta_e & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Omega^*/2 \\ 0 & -\Omega/2 & 0 \end{pmatrix}, \quad (5.22)$$

où δ_e est la fréquence de Larmor ($\hbar\delta_e$ l'écart en énergie entre les niveaux électroniques). L'évolution de la matrice densité est donnée par l'équation 3.14 avec le dissipateur suivant :

$$\mathcal{D} = \begin{pmatrix} \Gamma\rho_{22} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\Gamma}{2}\rho_{22} & -\frac{\Gamma}{4}\rho_{12} \\ 0 & -\frac{\Gamma}{4}\rho_{21} & -\frac{3\Gamma}{2}\rho_{22} \end{pmatrix}, \quad (5.23)$$

où le temps de cohérence est choisi à la limite théorique de $T_2^* = 2T_1$, ce qui implique que $\Gamma_2 = \Gamma_1/2$. Rappelons que les termes diagonaux décrivent l'émission spontanée et les termes hors diagonaux le déphasage. Comme il n'y a aucune interaction entre les niveaux $|0\rangle$ et $|2\rangle$ et entre les niveaux $|0\rangle$ et $|1\rangle$ dans l'hamiltonien, aucune cohérence n'est créée entre ces niveaux ; il n'est donc pas nécessaire d'inclure de termes de déphasage supplémentaires dans le dissipateur.

La figure 5.6 (b) montre les populations calculées du système avec $\Omega/2\pi = 5$ GHz, ce qui représente une fréquence de Rabi facilement atteignable lorsque le moment dipolaire électrique d'une transition est de l'ordre de 20 D. Un taux $\Gamma = 2$ GHz est choisi, correspondant à un temps de vie typique de 500 ps pour les boîtes quantiques et les centres isoélectroniques. Nous constatons que la population dans l'état $|0\rangle$, qui correspond également à la fidélité de l'initialisation, excède 99.5% après seulement 5 ns. Une initialisation très rapide et à haute fidélité est donc possible en utilisant les excitons chargés liant des trous légers.

Notons que le seul effet qu'aurait un temps de cohérence plus faible serait de réduire la visibilité des oscillations observées à la figure 5.6. Notons également que dans le cas présenté, le temps d'initialisation est limité par le taux d'émission spontanée ; une fréquence de Rabi plus élevée ne permettrait pas d'initialiser plus rapidement le spin.

5.4.2 Contrôle cohérent

Suite à l'initialisation, il est possible de tirer profit du système double- Λ offert par les trous légers pour contrôler de façon cohérente le spin électronique à l'aide de transitions Raman stimulées.

Décrivons l'évolution du système à six niveaux présenté à la figure 5.7 dans la base $\{|\downarrow\rangle_x, |\uparrow\rangle_x, |-3/2\rangle_x, |-1/2\rangle_x, |3/2\rangle_x, |1/2\rangle_x\}$. L'hamiltonien du système, dans la représentation d'interaction et dans l'approximation du référentiel tournant s'écrit

$$H = \hbar \begin{pmatrix} -\delta_e & 0 & -\Omega_{01}^*(t)/2 & -\Omega_{02}^*(t)/2 & -\Omega_{03}^*(t)/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Omega_{12}^*(t)/2 & -\Omega_{13}^*(t)/2 & -\Omega_{14}^*(t)/2 \\ -\Omega_{01}(t)/2 & 0 & \Delta_1 & 0 & 0 & 0 \\ -\Omega_{02}(t)/2 & -\Omega_{12}(t)/2 & 0 & \Delta_2 & 0 & 0 \\ -\Omega_{03}(t)/2 & -\Omega_{13}(t)/2 & 0 & 0 & \Delta_3 & 0 \\ 0 & -\Omega_{14}(t)/2 & 0 & 0 & 0 & \Delta_4 \end{pmatrix}, \quad (5.24)$$

où les Ω_{ij} sont les fréquences de Rabi couplant les deux états électroniques et les quatre états d'excitons chargés et les Δ_i sont les décalages spectraux définis à la figure 5.7. Les transitions $|\downarrow\rangle_x \rightarrow |3/2\rangle_x$ et $|\uparrow\rangle_x \rightarrow |-3/2\rangle_x$ sont interdites ; les fréquences de Rabi qui y sont associées sont donc nulles.

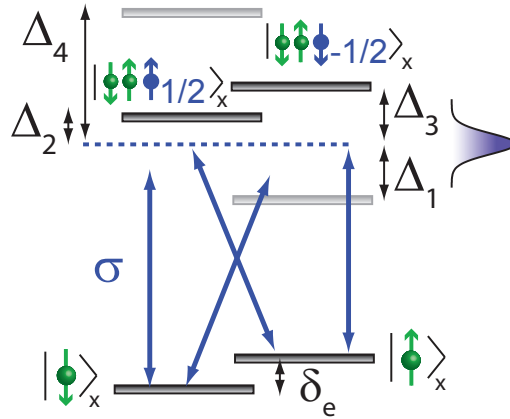


Figure 5.7 Les états trous légers de l'exciton chargé offrent un système double- Λ permettant le contrôle cohérent du spin électronique à l'aide d'un laser de rotation polarisé circulairement. δ_e représente le décalage entre les niveaux électroniques et les Δ_i sont les décalages spectraux entre le laser de rotation et les états de l'exciton chargé.

L'élimination adiabatique des niveaux excités est valide lorsque la condition $|\Delta_i| \gg \Omega_{jk}$ est satisfaite pour tous les i, j, k . Dans ce cas, il est possible de réduire l'hamiltonien en un hamiltonien effectif n'agissant que sur les états $|\downarrow\rangle_x$ et $|\uparrow\rangle_x$ et s'écrivant

$$H_{\text{eff}} = \hbar \begin{pmatrix} -\delta_e - \delta_{S1} & -\Omega_{\text{eff}}^*(t) \\ -\Omega_{\text{eff}}(t) & -\delta_{S2} \end{pmatrix}, \quad (5.25)$$

où la fréquence de Rabi effective est $\Omega_{\text{eff}}(t) = \frac{\Omega_{02}\Omega_{12}^*}{4\Delta_2} + \frac{\Omega_{03}\Omega_{13}^*}{4\Delta_3}$, $\delta_{S1} = \frac{|\Omega_{01}|^2}{4\Delta_1} + \frac{|\Omega_{02}|^2}{4\Delta_2} + \frac{|\Omega_{03}|^2}{4\Delta_3}$ et $\delta_{S2} = \frac{|\Omega_{12}|^2}{4\Delta_2} + \frac{|\Omega_{13}|^2}{4\Delta_3} + \frac{|\Omega_{14}|^2}{4\Delta_4}$. Les paramètres δ_{S1} et δ_{S2} proviennent de l'effet Stark AC qui crée un décalage en énergie des niveaux qui interagissent avec le laser de rotation. Notons que les états trous lourds ne font que contribuer à cet effet Stark (par l'entremise des fréquences Ω_{03} et Ω_{14}) et n'ont aucun effet sur la fréquence de Rabi effective.

Trouvons maintenant la polarisation du laser de rotation maximisant la fréquence de Rabi effective. Sachant que $\hbar\Omega = \vec{\mu} \cdot \vec{E}$ et connaissant les règles de sélection pour un exciton chargé (et donc les composantes de $\vec{\mu}$ pour chaque transition), il est possible d'écrire

$$\begin{aligned} \Omega_{02} &\propto E_y - iE_z \\ \Omega_{03} &\propto -E_x \\ \Omega_{12} &\propto -E_x \\ \Omega_{13} &\propto -E_y - iE_z. \end{aligned} \quad (5.26)$$

Puisque l'axe optique est selon z , le laser ne peut pas être polarisé selon z et $E_z = 0$. La fréquence de Rabi effective est donc proportionnelle à

$$\Omega_{\text{eff}} \propto -\frac{E_y E_x^*}{4\Delta_2} + \frac{E_x E_y^*}{4\Delta_3}. \quad (5.27)$$

Dans l'approximation où $\Delta_2 \simeq \Delta_3$, la fréquence de Rabi effective est nulle pour une polarisation linéaire et est maximale pour une polarisation circulaire ($E_x = \pm iE_y$). Ceci peut être interprété comme un phénomène d'interférence : lorsque la polarisation du laser de rotation est linéaire, les deux chemins possibles pour une transition Raman stimulée dans un système double- Λ interfèrent destructivement ; lorsque la polarisation est circulaire, ces deux chemins interfèrent constructivement. Il est donc nécessaire de choisir judicieusement la polarisation du laser de rotation.

Mentionnons par ailleurs que pour réaliser une rotation de Rabi autour de l'axe x de la sphère de Bloch, il est nécessaire que les $\Omega_{ij} \gg \delta_e$ pour $i = 0, 1$ et $j = 2, 3$. Puisque la condition $|\Delta_i| \gg \Omega_{jk}$ doit également être satisfaite pour tous les i, j, k , le décalage spectral doit être

suffisamment grand pour que ces deux conditions soient satisfaites. Un système idéal aurait un δ_e plutôt faible afin que les Δ_i ne soient pas trop élevés ; une augmentation des Δ_i réduit en effet la fréquence de Rabi effective.

Finalement, puisque l'hamiltonien effectif à l'équation 5.25 a la même forme que l'hamiltonien donné à l'équation 3.8 pour un système à deux niveaux, des rotations de Rabi autour de l'axe x de la sphère de Bloch peuvent être réalisées à l'aide d'un laser de rotation pulsé. Une expérience d'interférence de Ramsey comme celle présentée au chapitre 3 permet une rotation autour d'un deuxième axe de la sphère de Bloch. Plusieurs exemples d'interférences de Ramsey sur le spin d'un électron [29, 45] ou d'un trou [30] ont été réalisés expérimentalement, mais toujours en utilisant des excitons chargés liant des trous lourds.

5.4.3 Lecture

La lecture de l'état de spin peut être réalisée en utilisant un des états trous lourds de l'exciton chargé, tel qu'illustré à la figure 5.8. La transition choisie devrait être celle présentant le plus grand rapport d'embranchement η_x .

Le processus de lecture est similaire au processus d'initialisation. Un laser de polarisation π_y excite de façon résonante la transition. Puisque le taux d'émission spontané vers l'état $|\uparrow\rangle_x$ est beaucoup plus grand que vers l'état $|\downarrow\rangle_x$, plusieurs photons pourront être émis avant que le spin soit transféré vers l'état $|\downarrow\rangle_x$. La mesure de ces photons peut s'avérer difficile étant donné que le laser excitant la transition de recyclage est exactement à la même énergie que les photons émis. Une façon de discriminer le signal est de mesurer les photons selon une direction perpendiculaire au laser, selon l'axe y [115]. Une autre façon de discriminer le signal est de garder la détection selon z et d'utiliser une porte temporelle comme au chapitre 3. Cette dernière méthode peut être combinée avec une discrimination en polarisation : l'excitation est alors en polarisation circulaire droite (le plan xy est le plan de polarisation circulaire) et la détection en polarisation circulaire gauche.

Le temps de lecture est lié au taux d'émission spontanée et à l'efficacité η_{det} d'extraction des photons de la nanostructure. Cette efficacité peut être optimisée en plaçant l'émetteur dans une cavité optique et en utilisant des lentilles à immersion solide [31]. Pour réaliser une lecture en un essai, il est nécessaire que le temps requis pour mesurer un des nombreux photons émis par la transition de recyclage soit inférieur au temps de renversement du spin de l'électron. Si ce dernier temps est limité par l'émission de l'exciton chargé dans la transition interdite, la condition s'écrit $\eta_{\text{det}} > 1/\eta_x$. Puisque les efficacités de détection de photons sont au mieux de l'ordre de 0.5%, la condition peut s'écrire $\eta_x \gtrsim 200$. Il est donc nécessaire de faire cette lecture à haut champ magnétique si la nanostructure est de basse symétrie.

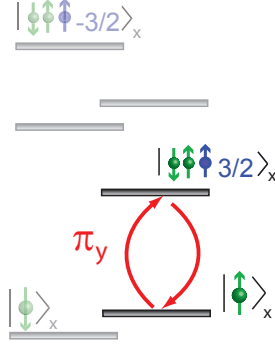


Figure 5.8 Pour réaliser la lecture du spin électronique, une transition de recyclage impliquant un état trou lourd est excitée par un laser polarisé linéairement selon y .

Par ailleurs, outre la méthode présentée dans ce chapitre, d'autres méthodes ont été proposées pour lire l'état d'un spin en un essai. L'effet Stark AC a été proposé afin de définir une transition de recyclage dans un système ne liant que des trous lourds en configuration de Voigt [117]. Toutefois, cette approche ne permet d'atteindre des rapports d'embranchement que de 50, ce qui n'est pas nécessairement suffisant pour réaliser une lecture en un essai. L'utilisation d'une boîte quantique double, c'est-à-dire deux boîtes quantiques à proximité, permet également de réaliser une lecture en un essai [126]. Toutefois, la fabrication d'un tel système est complexe et sa mise à l'échelle semble difficile. Finalement, une autre approche prometteuse pour réaliser la lecture en un essai d'un spin est la mesure de la rotation de Kerr d'un photon interagissant fortement avec un spin électronique lié à une boîte quantique placée dans une cavité optique [44, 45]. Cette méthode nécessite cependant des échantillons dont la fabrication est beaucoup plus complexe et la lecture en un essai basée sur cette celle-ci n'a pas encore été démontrée.

5.5 Conclusion

Pour conclure, nous avons proposé dans ce chapitre une méthode permettant l'initialisation, le contrôle cohérent et la lecture en un essai d'un qubit formé par un spin électronique dans une configuration unique du champ magnétique. Cette proposition tire profit des règles de sélection d'un exciton chargé négativement liant des trous lourds et des trous légers quasi-dégénérés. L'initialisation et le contrôle du spin sont réalisés en utilisant les états trous légers comme intermédiaire alors que la lecture fait appel aux états trous lourds.

Le système idéal pour implémenter la méthode aurait les propriétés suivantes :

- Une symétrie élevée, permettant une transition de recyclage très robuste ;

- Un taux d'émission spontanée (ou moment dipolaire) élevé, permettant l'initialisation, le contrôle et la lecture du spin rapides ;
- Une fréquence de Larmor électronique faible pour permettre des rotations complètes du spin (rotations autour de l'axe x de la sphère de Bloch uniquement) ;
- Un temps de cohérence du spin élevé.

Au prochain chapitre, nous démontrerons que les centres isoélectroniques d'azote dans le GaAs peuvent lier des excitons chargés négativement présentant à la fois des trous lourds et des trous légers. Bien que ces centres ne soient pas de hautes symétrie, nous montrerons que la méthode présentée dans ce chapitre peut y être implémentée sous champ magnétique.

CHAPITRE 6 EXCITONS ET EXCITONS CHARGÉS LIÉS À DES PAIRES D'AZOTE DE SYMÉTRIE C_s

Comme il a été démontré au chapitre précédent, les excitons chargés ont une importance centrale dans plusieurs propositions de traitement de l'information quantique en agissant comme niveau intermédiaire entre les deux niveaux d'un qubit. En plus de permettre l'initialisation, le contrôle et la lecture du qubit, les excitons chargés sont à la base de l'intrication d'un spin avec un photon, réalisée dans les boîtes quantiques [32–34]. La présence d'excitons chargés liés à des nanostructures permet donc d'envisager la réalisation de réseaux et répéteurs quantiques requérant des interfaces optiques de qualité entre des qubits stationnaires et des photons.

Outre les boîtes quantiques auto-assemblées, des excitons chargés peuvent être liés à d'autres systèmes confinant les porteurs de charge en trois dimensions : les centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe présentés au chapitre 2 en sont un exemple [96]. Mentionnons également qu'un exciton lié à un donneur neutre est un système similaire à un exciton chargé puisque trois charges sont présentes dans l'environnement du donneur. Les donneurs de fluor dans le ZnSe ont ainsi été proposés comme alternative aux boîtes quantiques pour le traitement de l'information quantique et des donneurs uniques ont pu être résolus optiquement dans ce système [127–130]. Toutefois, dans ces deux systèmes, les trous lourds et les trous légers sont largement séparés en énergie (~ 10 meV) à cause des contraintes liées à la croissance de l'échantillon, ce qui rend impossible la mesure de la PL liée aux trous légers.

Dans ce chapitre, nous présentons les propriétés d'émission d'un centre isoélectronique d'azote dans le GaAs liant des excitons chargés négativement avec des trous lourds et légers quasi-dégénérés. Ce centre, qui n'a jamais été identifié auparavant, peut également lier des excitons neutres. La modélisation de la polarisation des raies d'émission à champ magnétique nul pour l'exciton et à haut champ magnétique pour l'exciton chargé permet de conclure que le centre est de symétrie C_s . La modélisation théorique permet également de conclure qu'il est possible de réaliser le schéma d'initialisation, de contrôle et de lecture du spin présenté au chapitre 5.

En plus de ce schéma, un système excitonique présentant des trous lourds et légers pourrait être avantageux pour d'autres applications liées au traitement de l'information quantique : par exemple, le transfert direct de l'information quantique entre un photon et un électron [131], le contrôle cohérent d'un spin à champ magnétique nul [132] et le contrôle rapide d'un qubit formé par un trou grâce à des radio-fréquences [133] peuvent être réalisés en utilisant des trous légers. Dans cette optique, la croissance de boîtes quantiques dont le niveau fondamental est

composé de trous légers a récemment été réalisé [134], mais l'émission d'excitons chargés liés à un tel système n'a jamais été démontrée.

6.1 Centre de symétrie C_s en macro-PL

Le centre isoélectronique de symétrie C_s qui est décrit dans ce chapitre peut être observé grâce à une mesure de PL d'ensemble. La figure 6.1 présente un spectre de macro-PL de l'échantillon de GaAs décrit au chapitre 3. La longueur d'onde d'excitation est de 532 nm et la température de l'échantillon de 10 K. Les paires d'azote de symétrie C_{2v} émettant à 1508.9 meV et 1496.1 meV sont observées de même que le centre d'intérêt à 1505.1 meV. En étudiant cette transition en micro-PL, deux structures fines distinctes sont observées : une sera associée à un exciton neutre et l'autre à un exciton chargé.

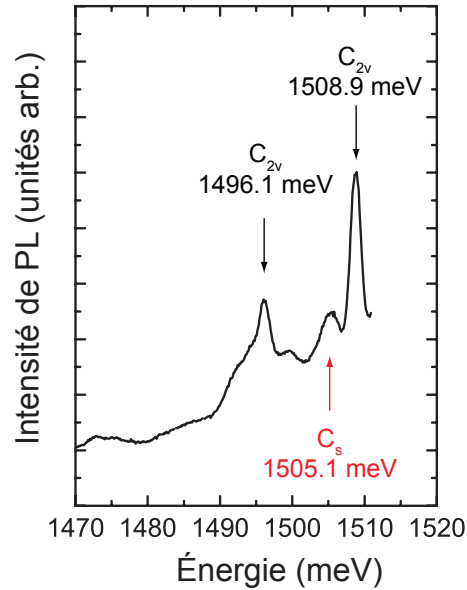


Figure 6.1 Le spectre de macro-PL du GaAs dopé à l'azote montre une transition à 1505.1 meV qui est attribuée à une paire d'azote de symétrie C_s .

Le centre de symétrie C_s pourrait faire intervenir deux atomes ou plus, d'azote ou d'un autre type d'impuretés. Toutefois, étant donné ses similitudes avec les paires d'azote de symétrie C_{2v} en ce qui a trait à la largeur des raies d'émission, à la densité de centres et à l'élargissement inhomogène, l'hypothèse que le centre est formé de deux atomes d'azote est retenue. Puisqu'en première approximation, plus les atomes sont rapprochés, plus les excitons sont liés fortement, le centre de symétrie C_s est attribué à une paire d'azote en troisième plus proche voisin, orientée selon la famille de direction $\langle 211 \rangle$. Cette attribution est cohérente avec les paires d'azote dans le GaP, où l'énergie d'émission d'une paire en configuration C_s se

trouve entre les énergies d'émission de deux paires de symétrie C_{2v} [79]. Dans les prochaines sections, l'analyse de la structure fine des excitons neutres et chargés confirmera que le centre est de symétrie C_s .

6.2 Excitons neutres

Dans cette section, la structure fine des excitons liés à des paires d'azote de symétrie C_s est développée théoriquement à l'aide d'arguments de symétrie. Deux configurations de paire menant à des structures fines différentes sont discutées. Puis, des spectres de PL résolus en polarisation sont présentés, confirmant l'assignation de la raie d'émission à 1505.1 meV à des paires d'azotes orientées selon $\langle 211 \rangle$.

6.2.1 Structure fine en symétrie C_s

Définissons d'abord le système d'axes de référence du laboratoire x' , y' et z' . L'axe optique z' du microscope est placé selon la direction de croissance de l'échantillon, soit $[001]$. Les axes x' et y' sont respectivement selon les directions $[\bar{1}10]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$, qui coïncident avec les bordures du substrat de GaAs.

Des structures fines différentes seront observées en fonction de l'orientation de la paire d'azote par rapport aux axes du laboratoire. Dans un premier cas de figure, présenté à la figure 6.2 (a), la paire d'azote est orientée selon l'axe $[112]$. L'axe x , défini comme l'axe perpendiculaire au plan miroir en symétrie C_s , est orienté dans la direction $[\bar{1}10]$; l'axe x est donc dans le plan de l'échantillon. L'axe y est choisi selon la direction de la paire d'azote et l'axe z est orienté selon $[11\bar{1}]$. La figure 6.2 présente également les projections des axes x , y et z sur le plan de l'échantillon : la projection de x coïncide avec l'axe de référence x' , orienté selon $[\bar{1}10]$ et les projections de y et z sont dans la direction opposée à y' .

Dans le second cas de figure, présenté à la figure 6.2 (b), la paire est orientée selon la direction $[211]$ (axe y). L'axe x est orienté selon $[0\bar{1}1]$ et l'axe z est selon $[\bar{1}11]$. L'axe perpendiculaire au plan miroir est donc hors plan. Les projections des axes x et y ne coïncident plus avec les axes x' et y' ; seule la projection de z coïncide avec x' . Nous désignerons pour la suite le cas présenté à la figure 6.2 (a) comme le cas *dans le plan* et celui en (b) comme le cas *hors plan*, faisant référence à l'axe x .

Afin de comprendre l'effet de l'orientation de la paire sur les polarisations mesurées, il est utile d'écrire les fonctions de base excitoniques en symétrie C_s . Nous utilisons ici la même notation qu'au chapitre 2 : l'électron peut se trouver dans les états de spin α_e ou β_e et le trous dans les états $\phi_1 = |\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$, $\phi_2 = |\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$, $\phi_3 = |\frac{3}{2}, \frac{-1}{2}\rangle$ et $\phi_4 = |\frac{3}{2}, \frac{-3}{2}\rangle$. Les fonctions

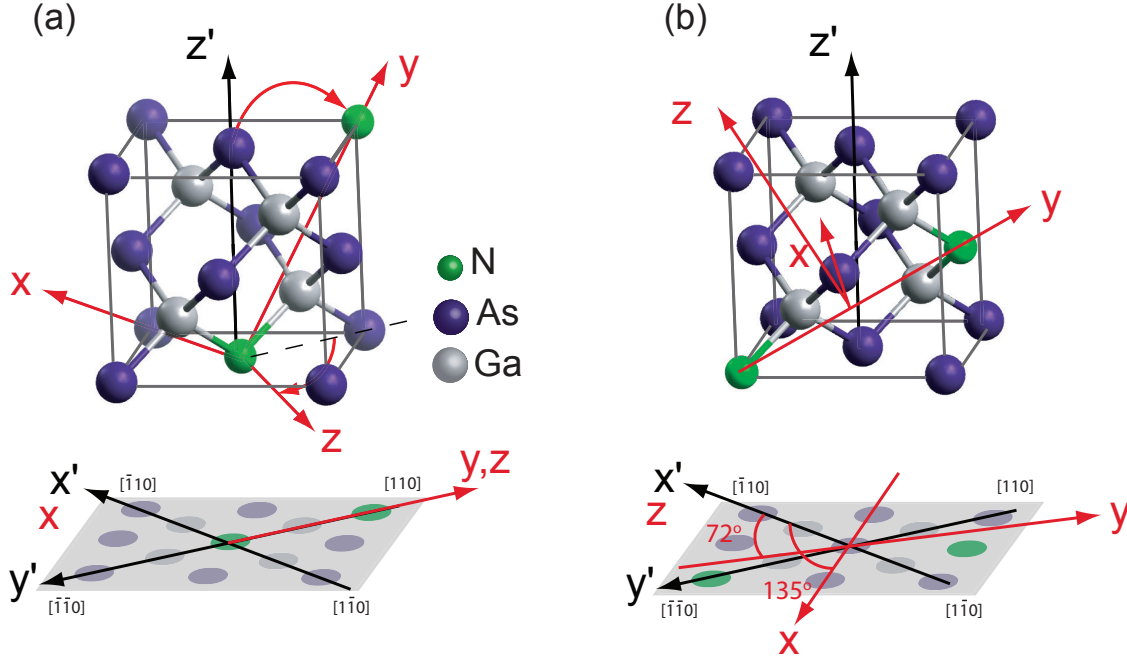


Figure 6.2 Deux configurations de paires d'azote donnant des structures fines distinctes en symétrie C_s . En (a) la paire est orientée selon la direction $[112]$ et l'axe x , perpendiculaire au plan miroir, est orienté selon $[\bar{1}10]$. En (b), la paire est selon $[211]$ et x selon $[0\bar{1}1]$. Les projections des axes x , y et z sur le plan de l'échantillon sont données dans les deux cas. Les axes x' , y' et z' sont les axes de référence du laboratoire.

de base en symétrie C_s , leur représentation et les éléments de matrice du moment dipolaire électrique sont présentés au tableau 6.1. Les quatre premiers états correspondent à des états trous lourds et les quatre autres à des états trous légers. Deux états de représentation Γ_1 sont polarisés linéairement selon l'axe de la paire y et deux selon z . Des quatre états de représentation Γ_2 , un seul est associé à une transition permise et polarisée selon x (ψ_7).

Rappelons que le champ cristallin a pour effet de mélanger les fonctions de base d'une même représentation. Ainsi, en principe, puisque chaque représentation comprend au moins une transition permise, il n'y a aucune transition interdite prédite par la théorie des groupes ; il devrait être possible d'observer les huit transitions excitoniques d'une paire de symétrie C_s . Toutefois, comme nous le verrons plus bas, seulement six transitions sont observées en pratique étant donné que les forces d'oscillateur de deux des huit transitions sont très faibles.

Les polarisations des transitions optiques peuvent être prédites, dans une certaine mesure, grâce aux fonctions de base du tableau 6.1. Puisque des quatre fonctions de base se transformant comme Γ_2 , une seule est permise et polarisée linéairement selon x , tous les états propres excitoniques se transformant comme Γ_2 sont polarisés linéairement selon x ou sont

Tableau 6.1 Fonctions de base excitoniques en symétrie C_s , leur représentation et leurs éléments de matrice d'interaction dipolaire selon (x,y,z), les axes définis par rapport à la paire d'azote. La polarisation associée à chaque état est indiquée par l'exposant entre parenthèses.

Fonction d'onde	Représentation	Éléments de matrice
$\psi_1^{(y)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta\phi_1 + \alpha\phi_4)$	Γ_1	$\left(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right)$
$\psi_2^{(z)} = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta\phi_1 - \alpha\phi_4)$	Γ_1	$\left(0, 0, \frac{-1}{\sqrt{2}}\right)$
$\psi_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta\phi_4 - \alpha\phi_1)$	Γ_2	$(0, 0, 0)$
$\psi_4 = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta\phi_4 + \alpha\phi_1)$	Γ_2	$(0, 0, 0)$
$\psi_5^{(y)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta\phi_3 + \alpha\phi_2)$	Γ_1	$\left(0, \frac{-1}{\sqrt{6}}, 0\right)$
$\psi_6^{(z)} = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta\phi_3 - \alpha\phi_2)$	Γ_1	$\left(0, 0, \frac{-1}{\sqrt{6}}\right)$
$\psi_7^{(x)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\beta\phi_2 - \alpha\phi_3)$	Γ_2	$\left(\frac{-2}{\sqrt{3}}, 0, 0\right)$
$\psi_8 = \frac{i}{\sqrt{2}}(\beta\phi_2 + \alpha\phi_3)$	Γ_2	$(0, 0, 0)$

noirs, si le couplage entre les fonctions de base est faible. Pour les états se transformant comme Γ_1 , la situation est plus compliquée ; les états propres sont des combinaisons linéaires d'états polarisés en y et en z . Les transitions optiques provenant de ces états sont donc polarisées linéairement dans le plan yz et les angles de polarisation dépendent de l'importance du mélange entre les fonctions de base.

La différence entre les deux configurations présentées à la figure 6.2 apparaît lorsque les polarisations sont projetées dans le plan de l'échantillon $x'y'$. Dans le cas où l'axe x est dans ce plan, 4 transitions sont polarisées linéairement selon x' (ou interdites) et 4 autres polarisées linéairement selon $-y'$. Dans le cas où l'axe x est hors plan, les 4 transitions polarisées linéairement selon x sont projetées à 135° de l'axe x' . Les 4 autres transitions sont projetées à un angle indéterminé par rapport à x' puisque la théorie des groupes ne nous informe pas sur l'importance du mélange entre les fonctions de base.

Le tableau 6.2 résume les polarisations prédites dans les deux configurations. Puisqu'une rotation de 90° de la paire entraîne une rotation des polarisations de 90° , des angles différents de polarisation peuvent être mesurés pour deux paires dont l'axe x est dans le plan (ou hors plan). Tous les cas possibles (c'est-à-dire les 24 direction $\langle 211 \rangle$) sont inclus au tableau 6.2.

6.2.2 Méthodologie expérimentale

Pour vérifier que la structure fine des excitons liés au centre isoélectronique émettant à 1505.1 meV est en accord avec la structure fine attendue pour une paire d'azote de symétrie C_s , des mesures de micro-PL ont été réalisées. Deux excitons neutres sont présentés, un pour

Tableau 6.2 Polarisation des transitions provenant des états se transformant comme Γ_1 et Γ_2 en symétrie C_s selon la direction de la paire lorsque l'axe x est dans le plan et hors plan

Axe x	Directions équivalentes	Représentation	Angle de polarisation
Dans le plan	$[1\ 1\ 2], [1\ 1\ \bar{2}], [\bar{1}\ \bar{1}\ 2], [\bar{1}\ \bar{1}\ \bar{2}]$	Γ_1	90°
		Γ_2	0°
	$[\bar{1}\ 1\ 2], [\bar{1}\ 1\ \bar{2}], [\bar{1}\ 1\ 2], [\bar{1}\ 1\ \bar{2}]$	Γ_1	0°
		Γ_2	90°
Hors plan	$[2\ 1\ 1], [2\ 1\ \bar{1}], [\bar{2}\ 1\ 1], [\bar{2}\ 1\ \bar{1}]$	Γ_1	indéterminé
	$[2\ \bar{1}\ 1], [2\ \bar{1}\ \bar{1}], [\bar{2}\ \bar{1}\ 1], [\bar{2}\ \bar{1}\ \bar{1}]$	Γ_2	135°
	$[1\ 2\ 1], [1\ 2\ \bar{1}], [1\ \bar{2}\ 1], [1\ \bar{2}\ \bar{1}]$	Γ_1	indéterminé
	$[\bar{1}\ 2\ 1], [\bar{1}\ 2\ \bar{1}], [\bar{1}\ \bar{2}\ 1], [\bar{1}\ \bar{2}\ \bar{1}]$	Γ_2	45°

lequel l'axe x est dans le plan de l'échantillon et l'autre pour lequel cet axe est hors plan.

Les données sont obtenues à l'aide du montage présenté au chapitre 3 et proviennent de l'échantillon également décrit au chapitre 3. L'échantillon est excité par un laser non-résonant à 780 nm et est placé dans un aimant supra-conducteur permettant d'atteindre des champs magnétiques de -6 à 6 T en configuration de Faraday, c'est-à-dire que le champ est appliqué parallèlement à l'axe optique du microscope. La polarisation de l'émission est analysée grâce à une lame à cristaux liquides dont le retard est contrôlé par la tension qui y est appliquée. Il est donc possible de passer d'une configuration demi-onde à quart d'onde en ne changeant que la tension appliquée sur la lame. Les angles de polarisation sont calibrés en alignant manuellement un des axes de l'échantillon, clivé selon la direction $[1\ 1\ 0]$, avec l'axe de transmission d'un polariseur linéaire. L'erreur sur ces angles est estimée à 5° . La résolution en énergie du spectromètre est de $30\ \mu\text{eV}$ et l'ajustement d'une lorentzienne sur les raies d'émission permet d'améliorer cette résolution à $5\ \mu\text{eV}$.

Les données sont modélisées à l'aide de l'hamiltonien de symétrie C_s dérivé à l'annexe B. Comme il a été démontré à la section 2.3.2, il est possible de modéliser de façon satisfaisante les centres isoélectroniques à l'aide d'un hamiltonien d'échange de symétrie T_d . Les termes de l'hamiltonien retenus sont donc les suivants :

$$H_{C_s} = \sum_{i=x,y,z} \left(v_i J_i^2 + a_i \sigma_i J_i \right) + v_{yz} \{ J_y, J_z \}, \quad (6.1)$$

où les v_i sont des paramètres de champ cristallin et les a_i des paramètres d'échange. La

procédure utilisée pour trouver les meilleurs paramètres est illustrée à la figure 6.3. À partir de paramètres d'essais, les vecteurs propres et les valeurs propres de H_{Cs} sont calculés. Le paramètre χ_E^2 est obtenu en sommant le carré des écarts entre les énergies calculées et mesurées. À partir des vecteurs propres, les éléments de matrice d'interaction dipolaire de chaque état sont calculés, puis projetés dans le plan de l'échantillon. Un vecteur de Jones est ainsi trouvé pour chaque transition. L'angle de polarisation linéaire, c'est-à-dire l'angle pour lequel l'intensité est maximale, est trouvé à partir du vecteur de Jones. Le paramètre χ_{Pol}^2 est obtenu en sommant le carré des écarts entre les angles calculés et mesurés. Finalement, le paramètre $\chi_{Tot}^2 = a\chi_E^2 + b\chi_{Pol}^2$ est calculé et les paramètres d'échange et de champ cristallin minimisant χ_{Tot}^2 sont trouvés. Mentionnons que les constantes a et b sont choisies de façon à donner autant d'importance aux énergies qu'aux angles de polarisation.

Bien que le nombre de paramètres servant à modéliser les données soit plutôt élevé, le fait d'imposer une condition sur les valeurs propres et les vecteurs propres de l'hamiltonien réduit considérablement l'espace de valeurs acceptables. L'incertitude sur les paramètres obtenus doit donc être inférieure à la valeur de 25% présentée au chapitre 2. Cette limite a été déterminée en faisant une étude rigoureuse de la plage de validité des paramètres lorsqu'aucune condition n'est imposée sur les vecteurs propres [84, 89].

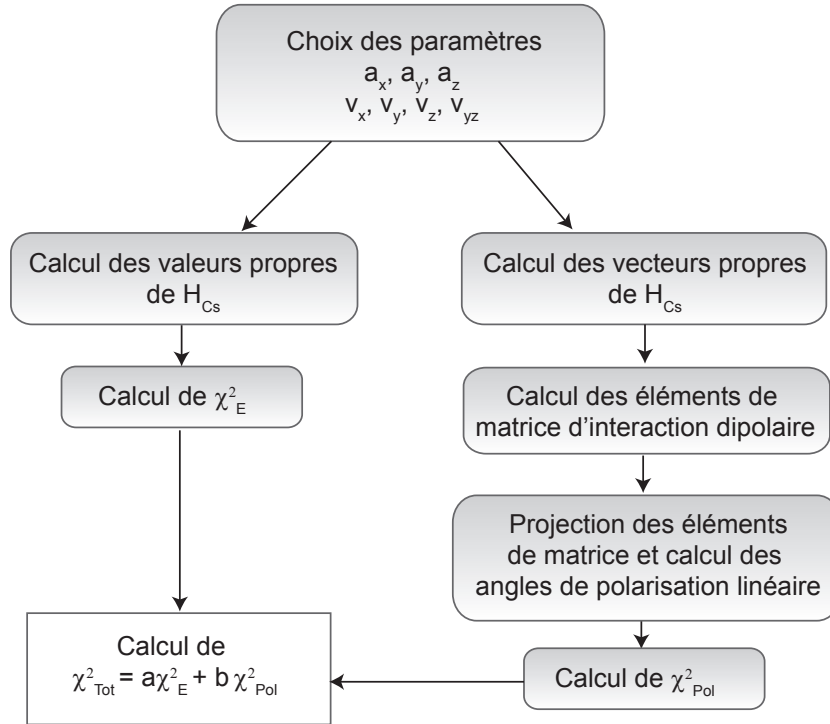


Figure 6.3 Procédure utilisée pour trouver les paramètres d'échange et de champ cristallin.

6.2.3 Exciton 1 - axe x dans le plan

Le spectre de PL d'un exciton neutre lié à une paire d'azote de symétrie C_s en fonction de l'angle de polarisation linéaire est présenté à la figure 6.4 (a). Deux spectres sont également présentés en (a), détectés à des angles de 0° et 90° . Six transitions y sont observées, deux polarisées linéairement à 0° , selon l'axe x' , et quatre polarisées linéairement à 90° , selon l'axe y' . Pour mieux visualiser les directions de polarisation, les intensités intégrées et normalisées des trois transitions à basse énergie sont présentées en fonction de l'angle de polarisation sur un diagramme polaire en (b). Les polarisations des transitions à haute énergie sont présentées en (c). Les transitions y sont identifiées par leur polarisation (x_i ou yz_j), où i et j augmentent avec l'énergie. Les polarisations observées concordent avec une paire d'azote orientée selon $[1\ 1\ 2]$ ou une direction équivalente.

Les données présentées à la figure 6.4 sont bien décrites par les paramètres d'échange et de champ cristallin présentés au tableau 6.3. Les énergies calculées à l'aide de ces paramètres sont représentées par des rectangles à la figure 6.4 (a) ; la hauteur des rectangles est proportionnelle à la force d'oscillateur calculée des transitions, c'est-à-dire à la norme au carré des éléments de matrice d'interaction dipolaire. Deux transitions, bien qu'elles ne soient pas strictement interdites, ont des forces d'oscillateurs trop faibles pour être représentées. Les états correspondant seront désignés comme des états noirs et leur énergie est indiquée par des flèches à la figure 6.4 (a). Ces états se transforment nécessairement comme Γ_2 puisque toutes les fonctions de base en symétrie C_s ayant des forces d'oscillateur nulles se transforment comme Γ_2 . Ainsi, les transitions polarisées selon l'axe pour lequel seulement deux transitions sont observées doivent également se transformer comme Γ_2 . Cela nous permet de conclure que l'axe x de la paire est parallèle à l'axe x' du laboratoire.

Par ailleurs, bien qu'il y ait un accord qualitatif entre les forces d'oscillateurs calculées et les intensités mesurées, les intensités doivent être interprétées avec prudence. En effet, elles dépendent non seulement des forces d'oscillateur, mais également de la dynamique de transfert entre les niveaux excitoniques [102].

Les polarisations calculées à partir des paramètres du tableau 6.3 sont représentées par des traits pleins aux figures 6.4 (b) et (c). Le modèle théorique ne permet que des angles de polarisation de 0° ($\pi_{x'}$) et de 90° ($\pi_{y'}$). Ces polarisations sont en accord avec les données pour les transitions de basse énergie. Toutefois, en (c), une déviation de 10° des directions de polarisation des transitions à haute énergie apparaît ; pour reproduire ces polarisations, un décalage de 10° est ajouté phénoménologiquement aux polarisations calculées. De tels décalages ont été observés à plusieurs reprises dans les boîtes quantiques et ont été attribués à un effet combiné d'un champ de contraintes et du mélange entre les trous lourds et légers [136–

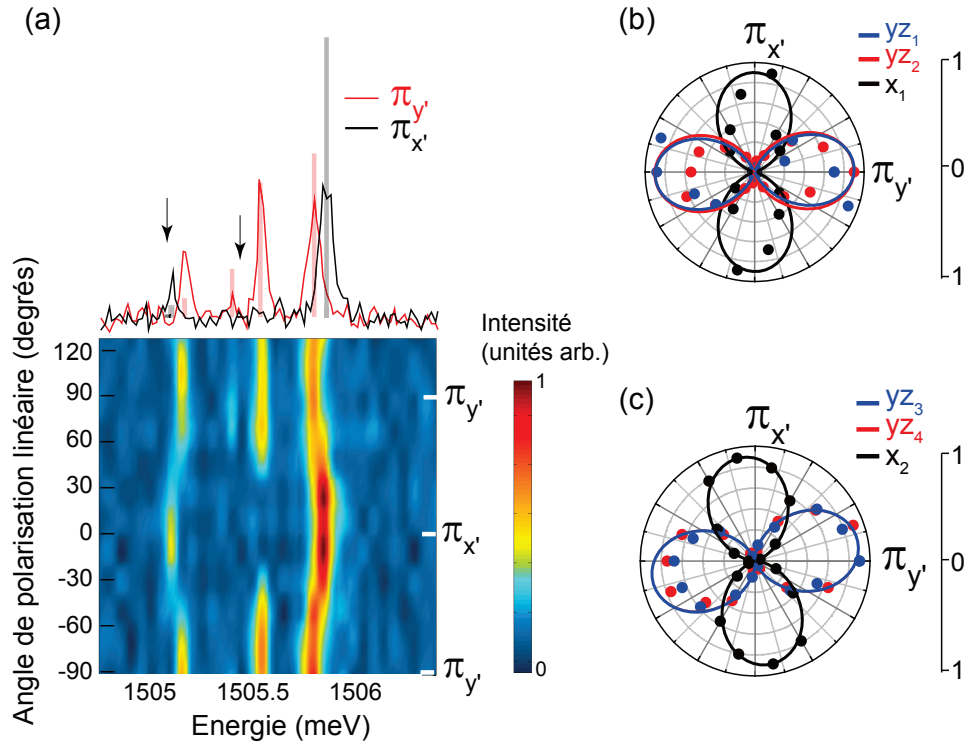


Figure 6.4 (a) Spectre de PL d'une paire d'azote de symétrie C_s en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Les deux spectres montrés au-dessus de la carte de couleur sont détectés à des angles de 0° ($\pi_{x'}$) et 90° ($\pi_{y'}$). Les rectangles sont les énergies d'émission calculées et leur hauteur correspond à la force d'oscillateur de chaque transition. Deux transitions, pour lesquelles les forces d'oscillateurs sont trop faibles pour être illustrées, sont indiquées par des flèches. (b) Intensités intégrées et normalisées des trois transitions à basse énergie en fonction de l'angle de polarisation, présentées sur un diagramme polaire. Les traits pleins sont les intensités calculées. (c) Intensités des trois transitions à haute énergie. Les transitions sont notées selon leur polarisation (x_i ou yz_i) et les indices i augmentent avec l'énergie. Adaptée avec permission de [135].

Tableau 6.3 Paramètres d'échange et de champ cristallin de la paire d'azote présentée à la figure 6.4.

Échange (μeV)	Champ cristallin (μeV)
$a_x = 208$	$v_x = -14$
$a_y = 194$	$v_y = 76$
$a_z = 237$	$v_z = 176$
	$v_{yz} = -51$

138]. Le décalage observé à la figure 6.4 (c) pourraient provenir de contraintes de cisaillement. Puisque l'hamiltonien C_s reproduit de façon satisfaisante les énergies et polarisations de chaque transition, l'hypothèse que la paire d'azote est orientée selon $[1\ 1\ 2]$ est valide. Pour confirmer que la raie d'émission à 1505.1 meV provient d'une paire d'azote de symétrie C_s , nous allons maintenant présenter la structure fine d'une paire dont l'axe x est hors plan.

6.2.4 Exciton 2 - axe x hors plan

La figure 6.5 présente le spectre de PL d'une paire d'azote orientée selon $[2\ 1\ 1]$ en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Six transitions sont observées sur les spectres détectés à 135° et 60° également présentés.

La figure 6.6 présente l'intensité intégrée de ces six transitions sur un diagramme polaire. Il est intéressant de constater que les angles de polarisation des transitions ne sont pas tous orthogonaux : deux transitions sont polarisées à environ 0° , deux à 75° et deux autres à 135° . L'observation de transitions à polarisées 135° est prédite par la théorie des groupes lorsque la paire d'azote est orientée selon $[2\ 1\ 1]$ ou selon des directions équivalentes. De plus, rappelons que si la paire était de plus haute symétrie (D_{2d} , C_{3v} ou C_{2v}), les angles de polarisation linéaires maximisant les intensités seraient tous orthogonaux entre eux. La structure fine observée ne peut donc être expliquée que par une basse symétrie.

Pour confirmer l'interprétation de la structure fine de la paire d'azote présentée aux figures 6.5 et 6.6, les données ont été modélisées en suivant la même procédure que précédemment. Les paramètres de champ cristallin et d'échange sont donnés au tableau 6.4. Les rectangles présentés à la figure 6.5 représentent les énergies calculées et leur hauteur la force d'oscillateur associée à chaque transition. Les flèches montrent la position en énergie des deux excitons noirs se transformant comme Γ_2 . Les forces d'oscillateur calculés pour ces deux transitions sont inférieures de près d'un ordre de grandeur à la force d'oscillateur la plus faible représentée à la figure 6.5, ce qui explique pourquoi seulement six des huit transitions sont observées. Nous constatons que les paramètres présentés au tableau 6.4 reproduisent à la fois les énergies d'émission et la polarisation de chaque transition de façon très satisfaisante.

La modélisation des polarisations d'une paire orientée selon $[2\ 1\ 1]$ est plus restreignante par rapport à une paire selon $[1\ 1\ 2]$. En effet, dans le second cas, le modèle théorique ne prédit que des angles de polarisations de 0° et de 90° . Dans le cas présent, les angles de polarisation des transitions associées à la représentation Γ_1 peuvent varier de façon continue entre 0° et 180° , en fonction des vecteurs propres calculés. De plus, dans les deux cas, la précision des paramètres obtenus est plus élevée par rapport aux paires de symétrie C_{2v} puisque six

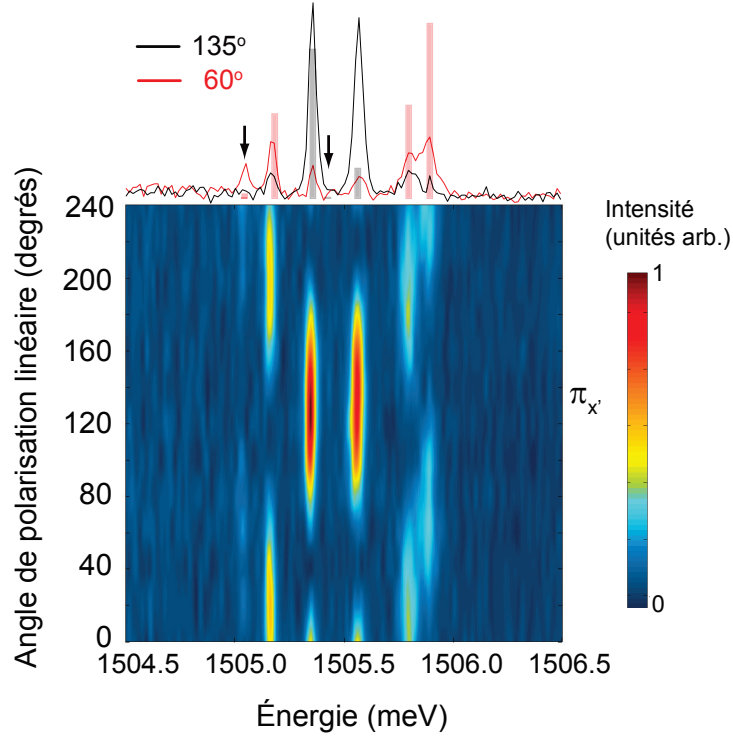


Figure 6.5 Spectre de PL en fonction de la polarisation d'une paire d'azote de symétrie C_s dont l'axe x est hors plan. Six transitions sont observées sur les deux spectres présentés au-dessus des données en polarisation, détectés à 60° et 135° . Les rectangles représentent les énergies calculées et leur hauteur les forces d'oscillateur. Les deux flèches indiquent la position de deux états noirs.

Tableau 6.4 Paramètres d'échange et de champ cristallin de la paire d'azote présentée à la figure 6.5.

Échange (μeV)	Champ cristallin (μeV)
$a_x = 260$	$v_x = 173$
$a_y = 250$	$v_y = -46$
$a_z = 201$	$v_z = 48$
	$v_{yz} = 27.7$

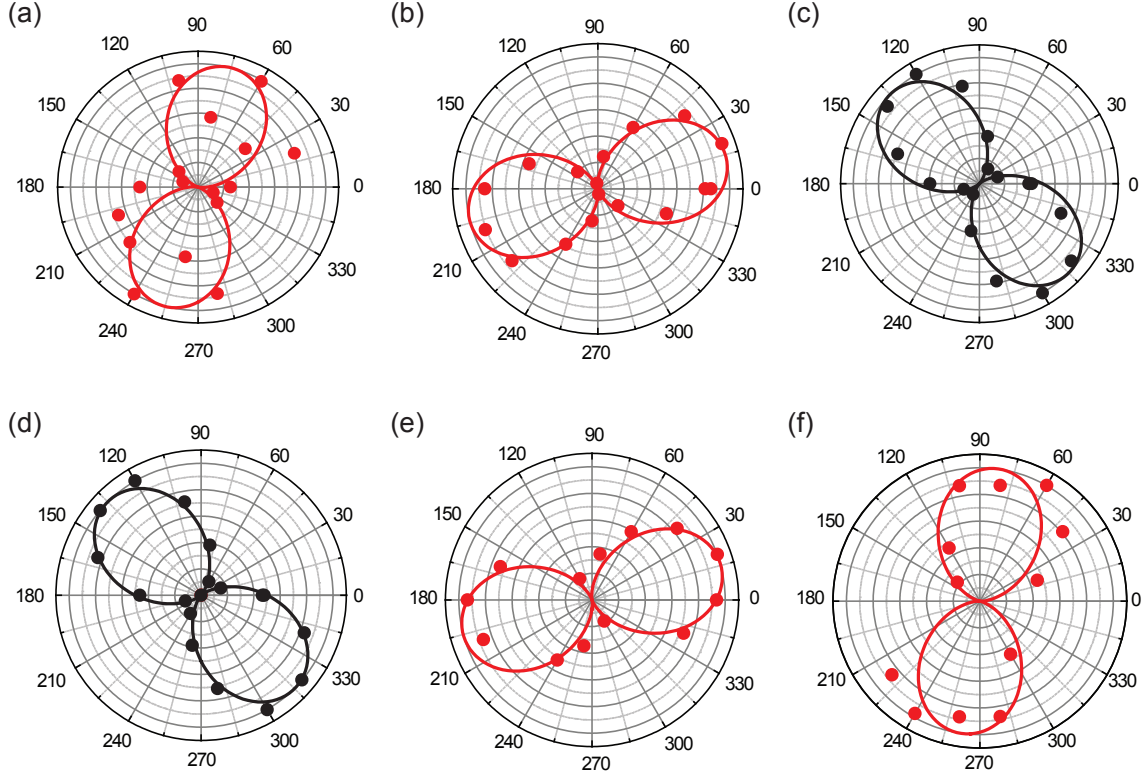


Figure 6.6 Intensité intégrée des transitions en fonction de l'angle de polarisation linéaire. Les courbes (a)-(f) correspondent aux transitions d'énergie croissante. Les transitions en noir (rouge) sont associées à la représentation Γ_2 (Γ_1)

transitions sont observées, contre quatre ou cinq en symétrie C_{2v} [84, 89, 102]. Les paires de symétrie C_s , particulièrement celles orientées selon $[2\ 1\ 1]$, pourraient donc s'avérer un excellent système pour étudier l'effet de l'environnement des centres isoélectroniques sur leurs propriétés d'émission.

L'environnement pourrait, par exemple, modifier l'écart en énergie entre les trous lourds et les trous légers. L'analyse de la structure fine des paires C_{2v} indique que les trous lourds sont à plus basse énergie que les trous légers [84, 89, 102]. Toutefois ce n'est pas nécessairement le cas pour les paires de symétrie C_s . La figure 6.7 présente un schéma des niveaux d'énergies calculés des deux paires C_s analysées. Pour chaque niveau, la représentation et la proportion de trous lourds sont données. Nous constatons que pour la paire orientée selon $[1\ 1\ 2]$, les niveaux à basse énergie ont une forte proportion de trous lourds. En opposition, les niveaux de basse énergie de la paire orientée selon $[2\ 1\ 1]$ sont composés majoritairement de trous légers. Cela implique qu'il y a un renversement des énergies entre les trous lourds et les trous légers d'une paire à l'autre.

Il est peu probable que ce phénomène soit causé par l'orientation différente des deux paires puisque la croissance de l'échantillon a été réalisée sur un substrat de GaAs : il n'y a donc pas de contraintes liées à la croissance et les directions $[1\ 1\ 2]$ et $[2\ 1\ 1]$ sont tout à fait équivalentes. Il est beaucoup plus probable que le renversement des trous lourds et légers soit dû à l'environnement immédiat de la paire d'azote. Nous avons d'ailleurs constaté au chapitre 3 que certaines paires d'azote ne présentent que la moitié des transitions anticipées à cause de contraintes locales. Nous supposons donc que ces contraintes locales peuvent varier suffisamment pour que certaines paires soient en compression et d'autres en tension, renversant l'écart en énergie entre les trous lourds et les trous légers.

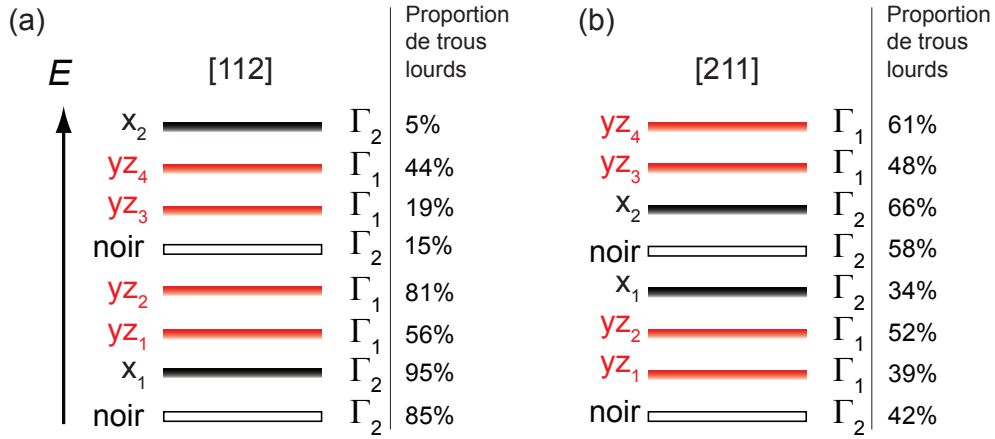


Figure 6.7 Schéma des niveaux d'énergie de la paire orientée en (a) $[1\ 1\ 2]$ et en (b) $[2\ 1\ 1]$. Les représentations de chaque état sont indiquées. Les états à basse énergie sont composés d'une plus forte proportion de trous lourds en (a) et d'une plus forte proportion de trous légers en (b).

La proportion calculée de trous lourds des états excitoniques dépend fortement des paramètres de champ cristallin. On pourrait donc remettre en doute le fait que les trous lourds soient à plus basse énergie pour la paire présentée à la figure 6.7 (a) et à plus haute énergie en (b) étant donné l'imprécision sur ces paramètres. Cependant, l'observation qualitative suivante permet de confirmer le renversement : les états se transformant comme Γ_2 sont à des énergies extrêmes en (a) et centrales en (b), ce qui ne peut être expliqué que par un renversement des énergies des trous lourds et légers. Comme il est possible d'identifier les états se transformant comme Γ_2 simplement en inspectant les spectres de PL en fonction de la polarisation, il est également possible de conclure sur la position relative des trous lourds et légers sans avoir à modéliser la structure fine.

Cette dernière constatation représente un avantage par rapport aux paires de symétrie C_{2v} . Il est possible qu'un tel renversement des trous lourds et légers survienne également en symétrie

C_{2v} . Cependant, les paires dans cette configuration ne présentent généralement que quatre transitions et la polarisation de celles-ci est symétrique (les deux transitions extrêmes sont polarisées à 0° et les deux transitions centrales à 90° , tel que présenté à la figure 2.9). Il devient alors difficile de discriminer entre un renversement des trous lourds et légers et une rotation de 90° de la direction de la paire, qui ont un effet identique sur la structure fine observée (les deux font passer les transitions extrêmes à 90° et centrales à 0°). Cela confirme que les paires de symétrie C_s sont mieux adaptées pour étudier l'effet de l'environnement sur les propriétés des centres isoélectroniques.

Finalement, si des contraintes locales peuvent renverser l'énergie des trous lourds et des trous légers, il est très probable qu'une perturbation externe puisse avoir le même effet. Il serait ainsi possible de générer un système ayant un niveau fondamental composé de trous légers. Récemment, des efforts ont été consacrés à développer des boîtes quantiques dont l'état fondamental est un état trous légers [134]. Ce système pourrait être avantageux afin de transférer directement l'information quantique entre un photon et un électron [131]. Or, les centres isoélectroniques pourraient s'avérer une alternative intéressante à ces boîtes quantiques qui sont difficiles à produire.

6.2.5 Discussion de la configuration du centre

Plusieurs observations ont permis de conclure que la raie d'émission à 1505.1 meV dans le GaAs est liée à une paire d'azote orientée selon $\langle 211 \rangle$. D'autres configurations ont toutefois été considérées : le défaut pourrait par exemple être composé d'un atome d'azote et d'un donneur ou un accepteur, ou même ne pas impliquer l'azote. Le défaut pourrait également être composé d'un seul atome ou de plus de deux atomes. Résumons les principaux arguments permettant d'exclure ces hypothèses.

- *Concentration* : L'intensité de la raie à 1505.1 meV présentée à la figure 6.1 est similaire à l'intensité de la raie à 1508.9 meV. Puisque les intensités d'émission d'un émetteur unique dans les deux configurations sont comparables, la concentration des deux défauts doit être similaire. Or, avec une concentration d'azote de $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, nous estimons que la probabilité de former un triplet d'azote est de 5 ordres de grandeur inférieure à celle de former une paire [86]. Il est donc peu probable que le centre implique plus de deux atomes d'azote. Il est raisonnable de supposer que la concentration des autres types d'impuretés est similaire ou inférieure à la concentration d'azote, ce qui nous permet de conclure qu'un triplet de toute sorte est très improbable. Par ailleurs, les concentrations d'impuretés uniques sont généralement trop élevées pour que celles-ci soient résolues. Nous concluons donc que le défaut est formé de deux atomes.

- *Symétrie* : La symétrie du défaut est une autre raison d'exclure les atomes uniques substitutionnels. En effet, ceux-ci formeraient un système de symétrie T_d . Or, la structure fine observée correspond à la symétrie C_s .
- *Paramètres calculés* : La structure fine excitonique est très bien reproduite avec des paramètres d'échange et de champ cristallin qui sont très semblables à ceux calculés pour les paires de symétrie C_{2v} . Cette similitude laisse croire que le défaut est composé d'atomes d'azote également.
- *Absence d'états excités* : Des excitons liés à des donneurs dans le GaAs émettant à des énergies similaires ont été observés (par exemple [139]). Toutefois, le potentiel de liaison des donneurs étant à plus longue portée, une série d'états excités peuvent généralement être observés. Or, aucun état excité n'a pu être associé au centre de symétrie C_s , ce qui laisse également croire qu'il s'agit d'un centre isoélectronique.

Pour toutes ces raisons et parce que la structure fine a été modélisée avec succès, nous concluons que les excitons émettant à 1505.1 meV sont liés à des paires d'azote orientées selon $\langle 211 \rangle$.

6.3 Excitons chargés

Dans cette section, nous démontrons qu'en plus des excitons de symétrie C_s , des excitons chargés peuvent émettre à 1505.1 meV dans le GaAs. L'analyse de la structure fine de ces excitons chargés à haut champ magnétique permet de conclure que ceux-ci sont liés à des paires d'azote de symétrie C_s . Il est également démontré que les excitons chargés lient à la fois des trous lourds et des trous légers : nous discutons donc de leur potentiel afin de réaliser l'initialisation, le contrôle et la lecture en un essai d'un qubit de spin électronique à l'aide de la méthode décrite au chapitre 5.

Mentionnons que les excitons chargés et les excitons neutres liés à des paires d'azote de symétrie C_s n'ont jamais été observés simultanément. Ceci laisse croire que la charge supplémentaire de l'exciton chargé est fournie par l'environnement et est toujours disponible. La présence d'un accepteur à proximité de la paire d'azote pourrait fournir cette charge. Bien que l'énergie de liaison de l'exciton chargé soit impossible à déterminer directement, l'énergie moyenne mesurée pour une vingtaine d'excitons neutres est plus élevée de 500 μeV que l'énergie moyenne mesurée pour une dizaine d'excitons chargés.

6.3.1 Magnéto-luminescence d'excitons chargés

La figure 6.8 présente le spectre de PL d'un exciton chargé négativement lié à une paire d'azote de symétrie C_s . Les spectres sont détectés en polarisation linéaire (en (a) et (c)) ou en polarisation circulaire ((b) et (d)). L'angle de polarisation circulaire est défini par l'angle d'une lame quart-d'onde placée devant un polariseur linéaire. Ainsi, pour un angle de 45° (135°), la PL est détectée en polarisation circulaire gauche (droite).

À champ magnétique nul (figure 6.8 (a) et (b)), la structure fine observée est composée de deux transitions séparées par une énergie $\delta_h = 100 \mu\text{eV}$. Tel que présenté à la figure 5.3, ces deux transitions sont attendues pour un système liant des trous lourds et des trous légers : comme nous le démontrerons plus bas, la transition à basse énergie provient d'états liant une plus forte proportion de trous lourds et la transition à haute énergie provient d'états de prédominance trous légers. L'absence de contrastes clairs en polarisations linéaire et circulaire indique que chaque transition est composée de plusieurs raies d'émission. Ceci est attendu pour un exciton chargé puisque l'interaction d'échange, responsable de la levée de dégénérescence des états de l'exciton neutre, est nulle entre le trou et le singlet d'électrons.

Chaque transition observée à champ nul se sépare en quatre raies d'émission à champ élevé. Huit transitions sont en effet observées à -6 T à la figure 6.8 (c) et (d). Le spectre d'émission d'un deuxième exciton chargé négativement en fonction du champ magnétique est également présentée à la figure 6.9, où l'évolution des deux raies à 0 T en deux quadruplet à haut champ est visible. L'observation d'un maximum de huit transitions à haut champ est attendue pour un exciton chargé négativement. Pour un exciton chargé positivement, il est possible de construire 12 états initiaux distincts en combinant un électron et deux trous (lourds ou légers) et 4 états finaux, soit deux états trous lourds et deux états trous légers. Il serait donc possible d'observer jusqu'à 24 transitions pour un exciton chargé positivement. L'observation de seulement huit transitions permet donc de confirmer que l'exciton est chargé négativement.

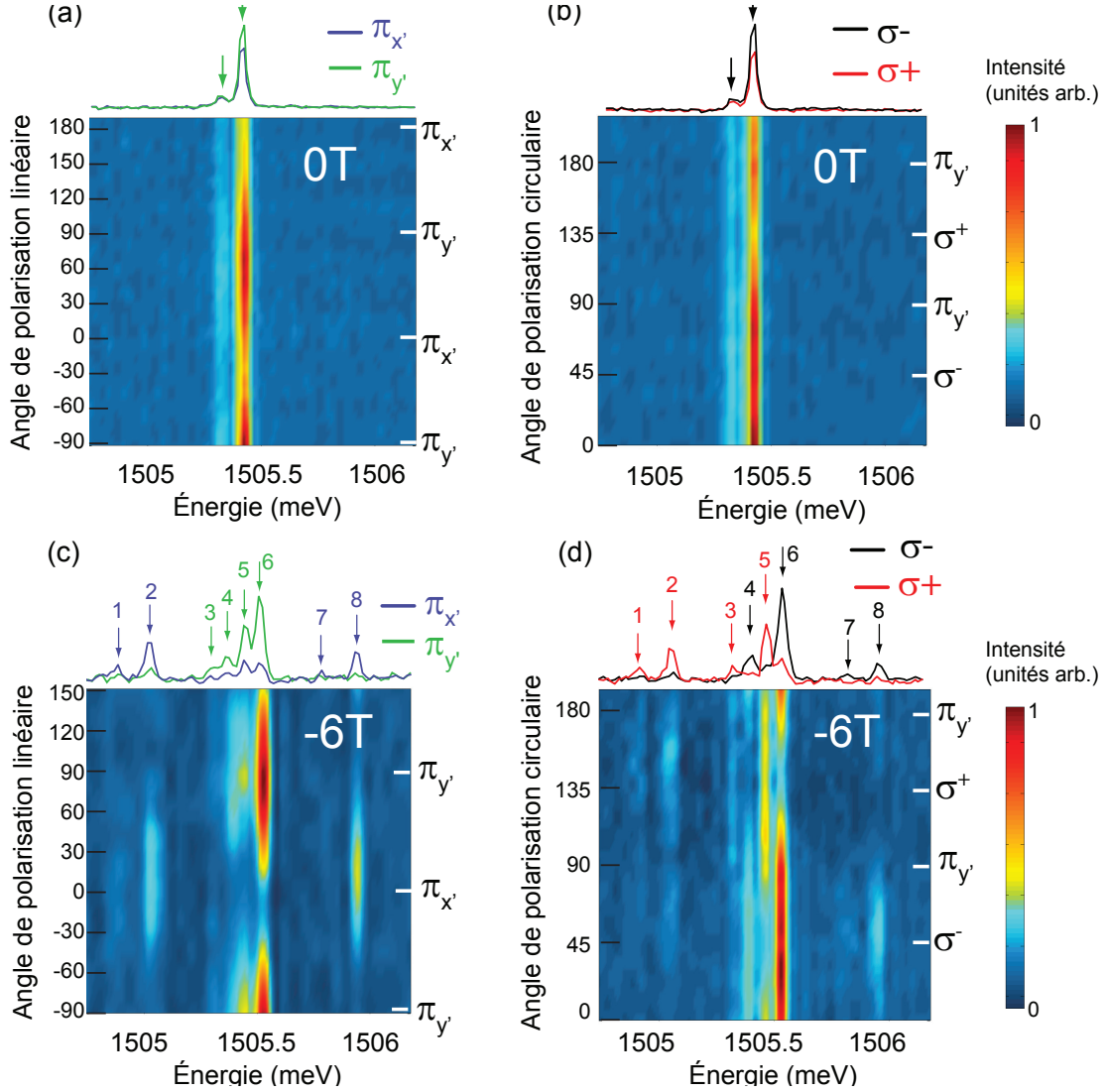


Figure 6.8 Spectres de PL résolu en polarisation (a) et (c) linéaire et (b) et (d) circulaire d'un exciton chargé négativement. Les spectres sont acquis à champ magnétique nul en (a) et (b) et à un champ de -6 T en (c) et (d). À champ nul, deux transitions non-polarisées sont observées. À champ élevée, huit transitions sont observées. Les spectres au-dessus de chaque carte de couleur sont détectés dans les polarisations $\pi_{x'}$, $\pi_{y'}$, σ^+ ou σ^- . Adaptée avec permission de [135].

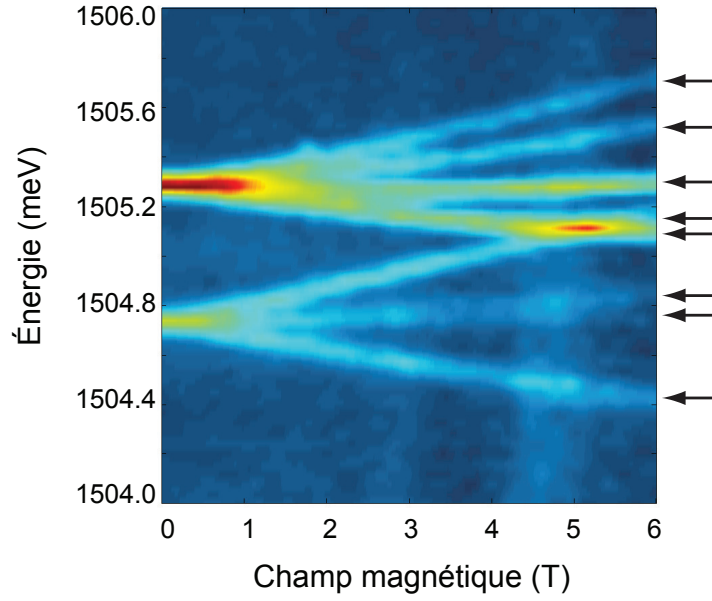


Figure 6.9 Spectre de PL détecté en polarisation linéaire en fonction du champ magnétique appliqué d'un exciton chargé. Les deux raies d'émission à champ nul évoluent en deux quadruplets à champ magnétique élevé. Les flèches indiquent les positions en énergie des raies d'émission.

L'observation de huit transitions polarisées elliptiquement (chaque transition présente un contraste en polarisation linéaire et circulaire) à la figure 6.8 permet également d'affirmer que le centre isoélectronique qui lie l'exciton chargé n'est pas de symétrie C_{2v} . Pour comprendre cette affirmation, il est utile de détailler le mélange entre les trous lourds et les trous légers induit par le champ cristallin. Reprenons l'hamiltonien 5.16 du champ cristallin en symétrie C_{2v} , cette fois dans la base J_z :

$$H_z = \begin{pmatrix} \delta_{1z} & 0 & \delta_{3z} & 0 \\ 0 & \delta_{2z} & 0 & \delta_{3z} \\ \delta_{3z} & 0 & \delta_{2z} & 0 \\ 0 & \delta_{3z} & 0 & \delta_{1z} \end{pmatrix}. \quad (6.2)$$

En diagonalisant cet hamiltonien, il est possible de montrer que les états propres $|T_i\rangle$ des excitons chargés à champ nul s'écrivent

$$\begin{aligned}
|T_1\rangle &= a_1 |3/2\rangle_z + b_1 |-1/2\rangle_z \\
|T_2\rangle &= a_2 |1/2\rangle_z + b_2 |-3/2\rangle_z \\
|T_3\rangle &= a_3 |-1/2\rangle_z + b_3 |3/2\rangle_z \\
|T_4\rangle &= a_4 |-3/2\rangle_z + b_4 |1/2\rangle_z,
\end{aligned} \tag{6.3}$$

où les a_i et b_i sont des coefficients déterminés par l'importance des paramètres de champ cristallin. Or, si le champ magnétique ne brise pas la symétrie spatiale du centre isoélectronique, il ne fait que modifier les coefficients a_i et b_i . Dans ce cas, les transitions $|T_1\rangle \rightarrow |\downarrow\rangle_z$, $|T_2\rangle \rightarrow |\uparrow\rangle_z$, $|T_3\rangle \rightarrow |\downarrow\rangle_z$ et $|T_4\rangle \rightarrow |\uparrow\rangle_z$ sont toutes polarisées linéairement selon l'axe du champ magnétique. Puisque celui-ci coïncide avec l'axe optique du microscope, ces quatre transitions ne pourraient pas être observées. Toutefois, si le champ magnétique brise la symétrie spatiale, les états propres de l'exciton chargé sont un mélange de plus de deux états de la base J_z et toutes les transitions sont alors observables.

Pour expliquer les huit transitions observées à la figure 6.9 sous haut champ magnétique, deux hypothèses sont proposées : 1) l'exciton chargé est lié à une paire de symétrie C_{2v} et le champ magnétique brise la symétrie spatiale ; 2) l'exciton chargé est lié à une paire de symétrie C_s . La première hypothèse est rejetée pour la raison suivante : la symétrie C_{2v} ne serait brisée par le champ magnétique que pour une paire hors plan. La structure fine observée serait ainsi bien différente pour une paire hors plan et dans le plan. Puisque la structure fine de tous les excitons chargés qui ont été mesurés est similaire à celle présentée à la figure 6.9, l'hypothèse que les excitons chargés sont liés à une paire de symétrie C_{2v} est exclue.

Nous concluons donc que l'exciton chargé émettant à ~ 1505 meV est plutôt lié à une paire d'azote de symétrie C_s orientée selon $[1\ 1\ 2]$. Dans ce cas, tel que présenté à la figure 6.10, le champ magnétique est appliqué selon l'axe optique, mais à 35° par rapport à l'axe y et brise la symétrie C_s .

Pour confirmer que l'exciton chargé est lié à une paire d'azote orientée en $[1\ 1\ 2]$, les énergies d'émission en fonction du champ magnétique et les polarisations des transitions de l'exciton chargé sont modélisées à l'aide de l'hamiltonien présenté à la section 5.3.1. La procédure est similaire à la modélisation des excitons neutres : les valeurs propres et vecteurs propres de l'hamiltonien sont d'abord calculés à partir d'un ensemble de paramètres. Les éléments de matrice de l'interaction dipolaire sont calculés d'après les vecteurs propres et les polarisations sont obtenues en projetant ces éléments de matrice sur les axes x' et y' . Notons que seule-

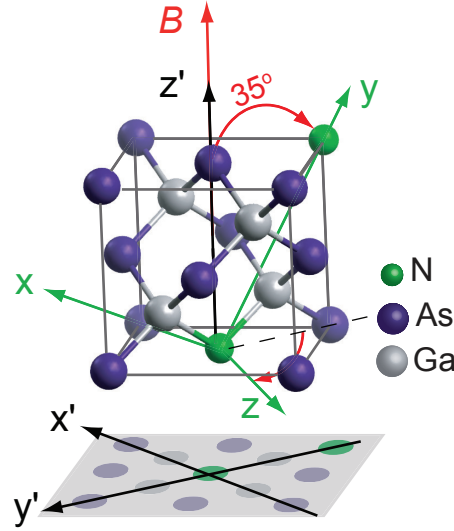


Figure 6.10 Configuration du champ magnétique : le champ est appliqué selon l'axe z' se trouve à 35° de l'axe y d'une paire d'azote de symétrie C_s orientée selon $[1\ 1\ 2]$.

ment les polarisations à -6 T ont été considérées dans la modélisation des données, car c'est seulement à haut champ magnétique qu'il est possible de résoudre les huit raies d'émission. Les paramètres minimisant le carré des écarts entre les valeurs expérimentales et théoriques sont enfin retenus.

La figure 6.11 présente les résultats de la modélisation et le tableau 6.5 les paramètres associés. À la figure 6.11 (a), les énergies d'émission des huit transitions sont présentées en fonction du champ magnétique appliqué. Les cercles pleins (vides) sont associés à des états liant majoritairement des trous lourds (légers). Les points noirs (rouges) sont associés à des transitions préférentiellement polarisées de façon circulaire gauche (droite). Les traits pleins sont les énergies calculées à l'aide des paramètres présentés au tableau 6.5. Nous constatons que l'accord entre les énergies calculées et mesurées est excellent ; l'écart moyen entre les deux est de $2\ \mu\text{eV}$, ce qui est inférieur à la résolution du système expérimental évaluée à $5\ \mu\text{eV}$. Seuls les écarts entre les transitions numérotées 3 et 4 sont plus importants et ceci peut être expliqué par leur faible intensité, qui rend plus difficile la détermination exacte de leurs énergies.

La figure 6.11 (b) présente l'intensité intégrée des transitions à -6 T en fonction de l'angle de polarisation circulaire et linéaire. Nous observons que les polarisations calculées (traits pleins) dans la base linéaire (en rouge) et circulaire (en bleu) reproduisent bien les données expérimentales, à l'exception encore de la transition 4, où il y a une déviation marquée pour

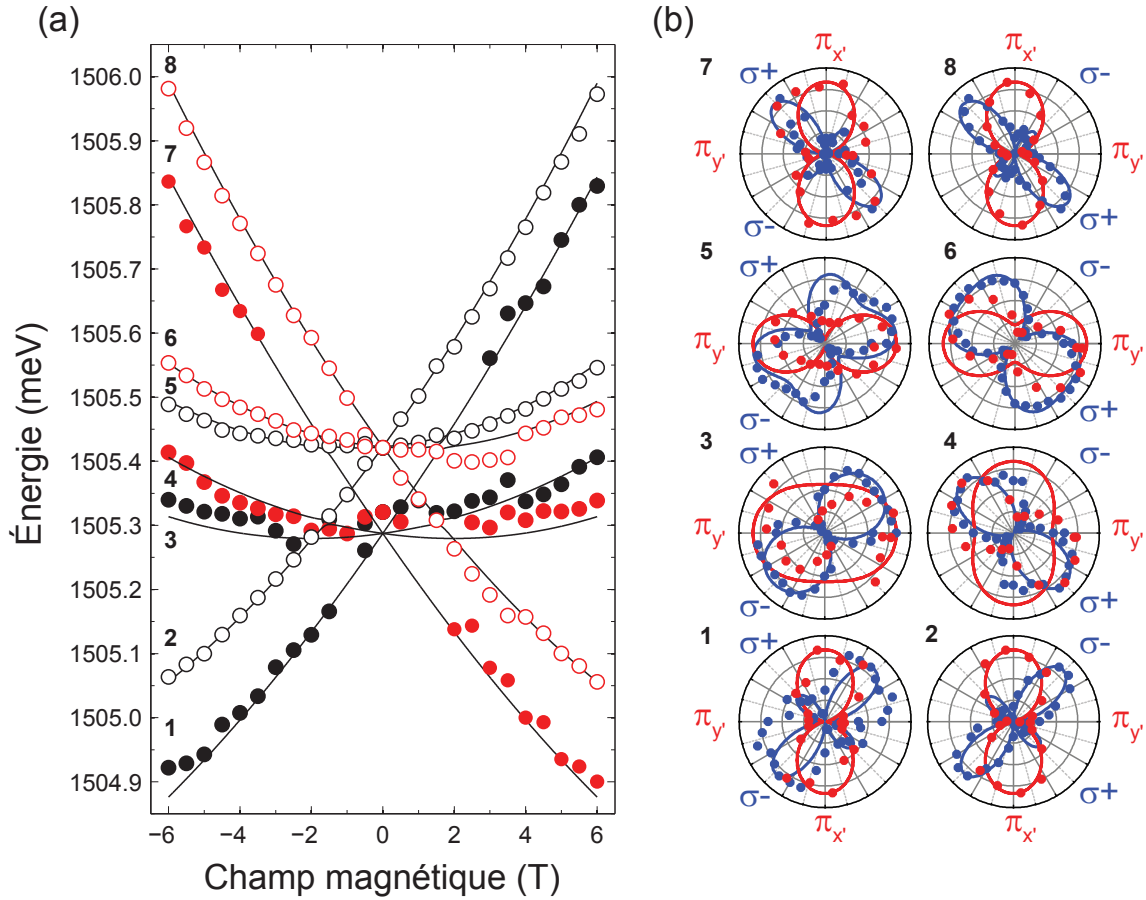


Figure 6.11 (a) Énergies des huit transitions de l'exciton chargé en fonction du champ magnétique. Les cercles pleins (vides) représentent des états liant majoritairement des trous lourds (légers). Les transitions émettant préférentiellement en polarisation circulaire droite (gauche) sont représentées en rouge (noir). Les énergies calculées sont représentées par des traits pleins. Les transitions sont numérotées en fonction de leur énergie à -6 T (b) Intensités intégrées en fonction de l'angle de polarisation linéaire (rouge) et circulaire (bleu) des huit transitions à -6 T. Les traits rouges et bleus sont les polarisations calculées respectivement dans les bases linéaires et circulaires. Adaptée avec permission de [135].

la polarisation linéaire. Or, selon le modèle, cette transition est très sensible à une légère inclinaison du champ magnétique : un champ magnétique incliné de 10° par rapport à l'axe z' peut entraîner une rotation de la polarisation de la transition 4 de 45° par rapport à l'axe x' . Une inclinaison du champ n'a toutefois que très peu d'effet sur les autres transitions, toujours selon le modèle. L'orientation exacte du champ magnétique sur l'échantillon n'étant pas très bien connue, il est raisonnable de croire qu'elle peut dévier de l'axe z' de quelques degrés.

Tableau 6.5 Paramètres de champ cristallin et d'interaction avec le champ magnétique de l'exciton chargé présenté à la figure 6.11.

Champ cristallin (μeV)	Champ magnétique	
$v_x = 10$	$g_y = 1.24$	$K = -1.16$
$v_y = -13$	$g_z = 1.28$	$L = 0.78$
$v_z = 63$	$\gamma_{X^-} = 2.4 \mu\text{eV}/\text{T}^2$	
$v_{yz} = -1$		

Il est intéressant de calculer le mélange entre les trous lourds et les trous légers à champ nul à partir des paramètres de champ cristallin donnés au tableau 6.5. Nous trouvons que les états émettant à basse énergie sont composés de 61% de trous lourds et que ceux émettant à haute énergie de 39% de trous lourds. Par ailleurs, les paramètres de champ cristallin sont significativement plus petits pour l'exciton chargé C_s que pour l'exciton neutre. Ceci pourrait être lié à une modification de l'énergie de confinement du trou lorsqu'il ressent le potentiel de deux électrons.

Les facteurs g obtenus pour l'électron semblent plutôt isotropes et sont supérieurs au facteur g d'un exciton lié à une paire de symétrie C_{2v} [84] (les facteurs g des excitons liés aux paires de symétrie C_s n'ont pas été mesurés). Or, le facteur g est lié à la localisation de l'électron : $g = 2$ pour un électron parfaitement localisé et $g = -0.44$ pour un électron délocalisé dans le GaAs [140]. Deux hypothèses peuvent expliquer cette observation : 1) un électron pourrait être plus fortement localisé à une paire d'azote lorsqu'il ne forme pas d'exciton. L'interaction coulombienne entre l'électron et le trou formant l'exciton aurait donc pour effet d'étendre la fonction d'onde de l'électron. 2) La localisation de l'électron pourrait être plus forte lorsqu'il est lié à une paire de symétrie C_s . Or, les excitons liés à la paire de symétrie C_s émettent à plus basse énergie, ce qui est cohérent avec une plus forte localisation.

Par ailleurs, étant donné l'importance du paramètre L , le facteur g effectif est positif pour les trous lourds et négatif pour les trous légers. Cela implique que les trous lourds ayant un moment cinétique aligné avec le champ magnétique sont à plus haute énergie alors que les

trous légers ayant un moment cinétique opposé au champ sont à plus haute énergie.

Finalement, notons que le décalage diamagnétique γ_{X^*} de l'exciton chargé est similaire au décalage diamagnétique de l'exciton neutre émettant à ~ 1508 meV. Tel que discuté à la section 2.4, ceci confirme que l'exciton est chargé négativement. En effet, si l'exciton était chargé positivement, l'état final de la transition optique serait un trou libre, puisqu'une paire d'azote dans le GaAs est un pseudo-accepteur. Le décalage diamagnétique de l'état final serait alors très grand et le décalage diamagnétique total de l'exciton chargé plus faible que celui de l'exciton neutre, voire négatif [97].

6.3.2 Discussion de la configuration de l'exciton chargé

Résumons les arguments présentés à la section précédente ayant permis de conclure que les excitons chargés sont formés deux deux électrons et d'un trou liés à des paires d'azote de symétrie C_s .

Détermination de la charge

- *Nombre de transitions* : Un exciton chargé positivement pourrait présenter jusqu'à 24 transitions. Un exciton chargé négativement ne peut présenter que les 8 transitions qui ont été mesurées.
- *Décalage diamagnétique* : Le décalage diamagnétique mesuré est similaire à celui d'un exciton neutre, ce qui est attendu pour un exciton chargé négativement lié à un pseudo-accepteur. Le décalage diamagnétique d'un exciton chargé positivement serait inférieur ou même négatif.
- *L'azote dans le GaAs est un pseudo-accepteur* : Puisque le potentiel créé par les paires d'azote dans le GaAs est attractif pour les électrons et répulsif pour les trous, il est beaucoup plus probable que deux électrons soient liés plutôt que deux trous.

Détermination de la configuration de paire liant l'exciton chargé

- *Nombre de transitions observé* : Tous les excitons chargés mesurés ont le même comportement en champ magnétique : les raies non-polarisées à champ magnétique nul évoluent en quadruplets à haut champ magnétique. Cela implique que l'exciton chargé est lié à une paire de symétrie C_s . Si l'exciton chargé était lié à une paire C_{2v} hors plan, le champ magnétique serait appliqué à 45° par rapport à l'axe z de cette paire et la structure fine observée pourrait être expliquée. Toutefois, dans ce cas, la structure fine pour une paire dans le plan, qui ne comprendrait que 4 transitions, devrait également être observable.

Puisque ce cas n'a jamais été observé, nous écartons la possibilité que l'exciton chargé soit lié à une paire d'azote de symétrie C_{2v} . Le même argument peut être invoqué pour écarter une symétrie D_{2d} .

- *Modélisation* : La modélisation théorique de la structure fine de l'exciton chargé reproduit de façon satisfaisante les polarisations d'émission lorsqu'une paire orientée selon $[112]$ est considérée. Nous avons tenté de reproduire les polarisations en considérant une paire de symétrie C_{2v} ou C_{3v} , mais les polarisations linéaires ne peuvent être reproduites avec succès.
- *Concentration* : Comme mentionné précédemment dans le cas de l'exciton, il serait étonnant que les excitons chargés soient liés à des triplets ou à des atomes uniques puisque la concentration d'excitons chargés est similaire à la concentration de paires d'azote de symétrie C_{2v} .

6.3.3 Initialisation, contrôle et lecture d'un spin à l'aide de l'exciton chargé C_s

Nous allons maintenant évaluer le potentiel de l'exciton chargé lié à une paire d'azote de symétrie C_s afin de réaliser la procédure d'initialisation, de contrôle et de lecture d'un spin électronique présentée au chapitre 5. Afin de tirer profit des règles de sélection de l'exciton chargé, un champ magnétique doit être appliqué dans la direction minimisant les termes hors diagonaux de l'hamiltonien. La direction optimale pour les paramètres de champ cristallin donnés au tableau 6.5 est l'axe z . L'axe optique est pris en configuration de Voigt, soit selon l'axe x tel qu'illustré à la figure 6.12 (a).

La modélisation théorique de l'exciton chargé permet d'estimer les états propres du système lorsqu'un champ est appliqué selon z . La figure 6.12 (b) présente les états calculés dans la configuration présentée en (a) lorsque le champ appliqué est de 8 T. Nous constatons que le mélange entre les trous lourds et légers, important à 0 T, devient inférieur à 5% à haut champ magnétique. Les états propres du système sont donc très semblables aux états propres du champ magnétique.

L'initialisation du spin électronique peut être réalisée en excitant en résonance la transition $|\uparrow\rangle_z \rightarrow |-1/2\rangle_z$ à l'aide d'un laser polarisé linéairement selon y . Si le taux d'émission spontanée d'un exciton chargé est comparable à celui d'un exciton neutre, le spin sera initialisé dans l'état $|\downarrow\rangle_z$ en 5 ns avec une fidélité supérieure à 99%, suivant le calcul présenté à la section 5.4.1.

Le contrôle du spin est réalisé en excitant le système avec un laser polarisé circulairement ayant un décalage spectral de Δ avec la transition $|\uparrow\rangle_z \rightarrow |1/2\rangle_z$. Pour que la rotation

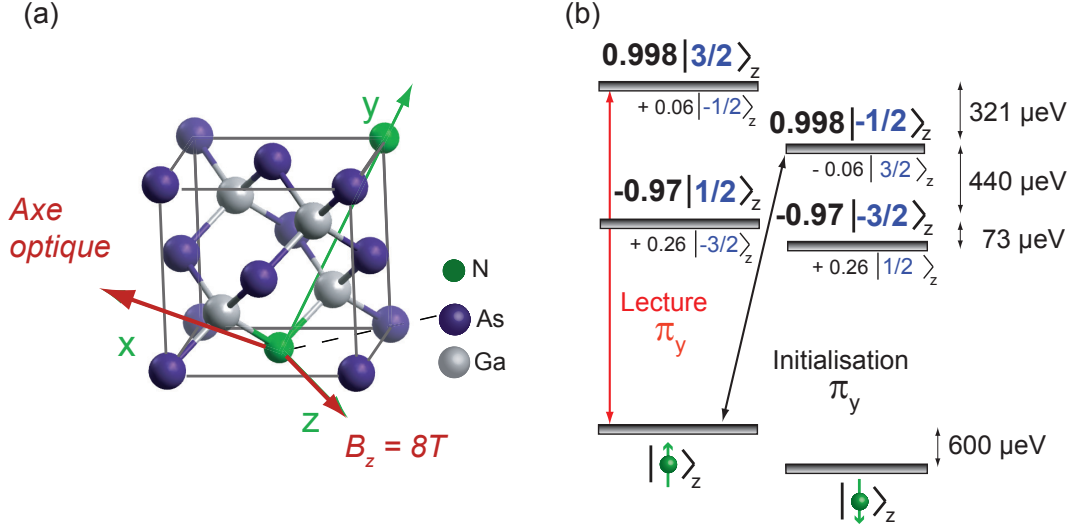


Figure 6.12 (a) Configuration permettant d'implémenter l'initialisation, le contrôle et la lecture d'un spin. Un champ magnétique est appliqué selon l'axe z et l'axe x est l'axe optique du système. (b) Énergies propres et vecteurs propres des excitons chargés et des électrons lorsqu'un champ de 8 T est appliqué en z . L'initialisation et la lecture du spin peuvent être réalisées en excitant les transitions indiquées à l'aide de lasers polarisés linéairement selon y . Adaptée avec permission de [135].

de Rabi soit complète (autour de l'axe x de la sphère de Bloch), il est nécessaire que les fréquences de Rabi Ω_{ij} soient beaucoup plus grandes que le décalage entre les deux niveaux électroniques $\delta_e = 600 \mu\text{eV}$. Or, pour que l'élimination adiabatique des niveaux excités soit valide lors des rotations de Rabi, il est également nécessaire que $\Delta \gg \Omega_{ij}$. Dans les boîtes quantiques, des rotations complètes du spin électronique ont été réalisées avec $\delta_e = 108 \mu\text{eV}$ et $\Delta = 1.2 \text{ meV}$ [29]. Puisque δ_e est six fois plus grand pour l'exciton chargé lié à une paire d'azote de symétrie C_s , un décalage spectral d'environ 7 meV devrait être nécessaire pour générer une rotation complète du spin. La fréquence de Rabi peut quant à elle être optimisée en modifiant la puissance du laser de rotation. L'augmentation du décalage spectral et de la fréquence de Rabi pourrait être problématique dans la mesure où outre l'exciton chargé, d'autres états électroniques liés à des donneurs ou accepteurs pourraient alors être excités par le laser. Ceci pourrait entraîner une augmentation du bruit de charge dans l'environnement du qubit électronique et ainsi résulter en une diminution de son temps de cohérence.

Finalement, la lecture du spin est réalisée en excitant la transition $|\uparrow\rangle_z \rightarrow |3/2\rangle_z$ à l'aide d'un laser polarisé linéairement selon y . Le rapport d'embranchement entre la transition excitée, qui est permise, et la transition interdite $|3/2\rangle_z \rightarrow |\downarrow\rangle_z$ est de $\eta_z = 400$. Cette valeur est comparable à la valeur de $\eta_z = 450$ qui a permis de démontrer la lecture en un essai d'un spin lié à une boîte quantique [31]. Étant donné les incertitudes sur les paramètres de champ

cristallin, il est estimé que $100 < \eta_z < 1000$ à 8 T. Il devrait donc être possible de réaliser une lecture en un essai du spin via l'exciton chargé négativement.

Nous concluons donc que la structure fine des excitons chargés liés aux les paires d'azote de symétrie C_s devrait permettre l'initialisation, le contrôle et la lecture en un essai d'un spin électronique. Toutefois, mentionnons que positionner précisément le champ magnétique selon l'axe z pourrait s'avérer un défi expérimental. Quoiqu'il en soit, nous concluons de nouveau que les centres isoélectroniques pourraient s'avérer une alternative intéressante aux boîtes quantiques dans un contexte de traitement de l'information quantique.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, il a été démontré que des excitons neutres et des excitons chargés peuvent être liés à des paires d'azote dans le GaAs. À l'aide d'arguments de symétrie et par une analyse rigoureuse de la structure fine des excitons neutres et chargés, il a été déterminé que l'émission à 1505.1 meV provient de paires d'azotes de symétrie C_s orientées dans les directions $\langle 211 \rangle$.

Les excitons chargés liés à ces paires d'azote semblent prometteurs pour initialiser, contrôler et lire un spin électronique, principalement parce qu'ils peuvent lier à la fois des trous lourds et des trous légers. Toutefois, bien que leur structure fine soit adéquate pour implémenter la procédure proposée au chapitre 5, il n'est pas certain que la dynamique de l'exciton chargé permette cette implémentation. En effet, nous n'avons que très peu d'indications sur ce qu'il advient de la charge résiduelle après l'émission d'un photon. Or, il est essentiel que cette charge demeure liée à la paire d'azote afin de contrôler son spin. Il serait donc pertinent d'évaluer l'importance, par exemple, des processus Auger qui pourraient empêcher l'utilisation du spin électronique comme qubit. Par ailleurs, l'étude de la dynamique de l'exciton chargé pourrait éventuellement expliquer pourquoi certaines paires d'azote lient des excitons neutres et d'autres des excitons chargés.

CHAPITRE 7 CONCLUSION

L'objectif de cette thèse était de démontrer que les centres isoélectroniques forment une plateforme alternative d'intérêt aux systèmes actuellement envisagés pour la réalisation d'interfaces optiques convertissant des qubits stationnaires en qubits volants. En particulier, le potentiel des paires d'azote dans le GaAs a été analysé. L'avantage principal de ce centre isoélectronique par rapport aux boîtes quantiques est son élargissement inhomogène pouvant être aussi bas que 25 GHz, soit de deux à trois ordres de grandeur inférieur à celui des boîtes quantiques. Ce faible élargissement inhomogène provient de la nature atomique du défaut et est comparable à celui des centres NV dans le diamant et des centres de couleur dans le SiC.

Nous avons démontré, par la mesure de rotations de Rabi, de franges de Ramsey et par l'analyse des propriétés d'émission d'excitons neutres et chargés, qu'à ce faible élargissement inhomogène s'ajoutent les propriétés remarquables suivantes :

- Le moment dipolaire excitonique moyen est de 27 D et comparable à ceux mesurés dans les boîtes quantiques. Les mesures indiquant la présence d'un effet Stark AC présentées au chapitre 4 semblent confirmer ce haut moment dipolaire ;
- Les qubits excitoniques liés aux centres isoélectroniques peuvent être contrôlés optiquement et placés sur n'importe quel point de la sphère de Bloch. Le temps de cohérence mesuré est de 112 ps pour l'exciton neutre, également comparable aux temps de cohérence des excitons dans les boîtes quantiques ;
- Le déphasage induit par l'excitation est réduit d'un ordre de grandeur par rapport aux boîtes quantiques pour les excitons liés aux paires d'azote de symétrie C_{2v} , ce qui devrait permettre la réalisation de portes logiques sur les qubits excitoniques plus rapidement avec une même fidélité ;
- Les excitons et les excitons chargés lient à la fois des trous lourds et des trous légers. Or, il a été démontré au chapitre 5 qu'un tel système permet l'initialisation, le contrôle cohérent et la lecture d'un qubit de spin dans une configuration unique du champ magnétique, ce qui n'est pas possible dans les boîtes quantiques ;
- Les états trous légers d'un exciton lié à une paire d'azote de symétrie C_s peuvent se trouver à plus basse ou à plus haute énergie que les états trous lourds. Or, un état trou léger à basse énergie est souhaitable pour certaines applications liées au traitement de l'information quantique.

Ainsi, à l'instar des boîtes quantiques, les centres isoélectroniques sont fortement couplés avec la lumière. De plus, contrairement aux boîtes quantiques, la présence de trous légers liés à ce système pourrait offrir de nouvelles possibilités.

Par rapport aux centres NV dans le diamant et les centres de couleur dans le SiC, les centres isoélectroniques se démarquent par leur moment dipolaire plus élevé et leur couplage avec les phonons beaucoup plus faible. Le taux d'émission de photons à une longueur d'onde donnée est donc potentiellement beaucoup plus élevé dans ce dernier système. Mentionnons tout de même que les centres isoélectroniques, contrairement aux deux autres systèmes, n'ont pas le potentiel d'être opérés à la température ambiante.

Une autre propriété importante des centres isoélectroniques est la possibilité de les former dans de nombreux matériaux hôtes : ils pourraient donc être compatibles avec d'autres systèmes actuellement étudiés pour réaliser des technologies quantiques. De plus, la plupart de ces matériaux hôtes sont des semi-conducteurs compatibles avec des procédés de micro-fabrication déjà existants.

Les centres isoélectroniques se comparent donc avantageusement aux boîtes quantiques, aux centres NV dans le diamant et aux centres de couleurs dans le SiC. Toutefois, avant que ceux-ci puissent être considérés comme de sérieuses alternatives, il sera nécessaire de répondre aux questions suivantes :

1. *Quel taux d'émission un centre isoélectronique peut-il atteindre ?*

Malgré le moment dipolaire très élevé des excitons liés aux paires d'azote dans le GaAs, ces émetteurs ne sont pas très brillants : seulement quelques dizaines de photons par seconde sont mesurés. Ce taux d'émission est de plusieurs ordres de grandeur inférieur aux taux d'émission des centres NV et des boîtes quantiques. Lorsque la PL des excitons est mesurée hors résonance, ce faible taux peut être expliqué par un processus de capture inefficace. Mais qu'en est-il pour l'excitation résonante ? Les mesures présentées aux chapitres 3 et 4 n'ont pas permis d'évaluer directement le taux d'émission en résonance. Celui-ci est-il comparable à ce qui est mesuré dans d'autres systèmes, ou est-il limité par des phénomènes physiques n'ayant pas été considérés ? Il sera essentiel de répondre à cette question puisque le taux d'émission s'avère une des propriétés les plus importantes en vue d'intriquer des spins optiquement.

2. *Pourquoi certaines paires de symétrie C_s lient-elles des excitons chargés et d'autres non ?*

La question de la dynamique de la formation de l'exciton chargé est essentielle au contrôle d'un spin électronique lié à une paire de symétrie C_s ; toutefois, les connaissances actuelles ne permettent pas de conclure sur cette dynamique. Une des hypothèses proposées pour expliquer que certaines paires forment des excitons chargés est la présence d'un accepteur

dans l'environnement de ces paires pouvant fournir de façon permanente une charge supplémentaire. Si cette hypothèse s'avère juste, il devient important de connaître ce qu'il advient de cette charge après la recombinaison de l'exciton chargé. Par exemple, demeure-t-elle liée au centre isoélectronique et son spin est-il préservé ? Si ce n'est pas le cas, le contrôle des qubits de spin ne pourra pas être réalisé à l'aide de paires d'azote de symétrie C_s , d'où l'importance de cette question.

Afin de mieux comprendre la formation d'excitons chargés, il sera nécessaire d'étudier les mécanismes de liaison d'excitons aux centres isoélectroniques, qui demeurent à ce jour mal compris.

Puisque les centres isoélectroniques n'ont été que très peu étudiées dans un contexte de traitement de l'information quantique, de nombreuses expériences et démonstrations intéressantes restent à faire dans ce système. Voici une brève descriptions des travaux futurs qui pourraient être réalisés.

À court terme, il serait intéressant de développer la technique de fluorescence en résonance utilisée au chapitre 4. Cela permettrait de démontrer fermement l'apparition du doublet d'Autler-Townes à haute puissance d'excitation. La mesure directe du spectre de fluorescence et du triplet de Mollow serait encore plus pertinente, car elle permettrait d'évaluer directement le taux d'émission des centres isoélectroniques et de répondre à la question citée précédemment. En effet, en évaluant le nombre de photons mesurés par seconde en résonance et en évaluant les pertes dans le montage optique, le taux d'émission pourrait être déterminé. Cette mesure pourrait être réalisée en utilisant un filtrage en polarisation du laser résonant. Toutefois, elle nécessiterait probablement l'utilisation d'un laser plus stable et plus étroit en fréquence que celui utilisé au chapitre 4.

Une autre avenue qui pourrait être explorée grâce à la fluorescence en résonance est l'étude des phénomènes nucléaires dans les centres isoélectroniques. Un laser résonant pourrait en effet polariser les noyaux formant le centre isoélectronique via l'interaction hyperfine en excitant de façon préférentielle un état excitonique ayant un spin bien défini. Or, un accès optique aux spins nucléaires serait un premier pas vers la réalisation de mémoires quantiques ayant des temps de cohérence beaucoup plus élevés que les électrons et les excitons.

En connaissant mieux les propriétés d'émission en résonance des centres isoélectroniques, il devrait être possible de démontrer l'initialisation et le contrôle d'un spin électronique, selon la procédure décrite au chapitre 5. En parallèle, il serait intéressant de mesurer le spectre d'émission d'un exciton chargé en fonction de l'orientation d'un champ magnétique appliqué. Cela permettrait de confirmer sa symétrie et de mesurer directement le rapport d'embranchement des transitions de recyclage, ce qui représente une donnée clé pour la

lecture d'un spin en un essai. Par la suite, il serait possible de combiner le contrôle de spin avec la lecture en un essai en utilisant la procédure présentée aux chapitres 5 et 6.

À plus long terme, il serait particulièrement intéressant d'exploiter le grand moment dipolaire des centres isoélectroniques en les couplant avec des cavités optiques. Or, des cavités à miroirs de Bragg distribués sont fréquemment fabriquées dans le GaAs. La démonstration d'un couplage fort entre un système de nature atomique, mais à l'état solide, et une cavité optique serait d'un grand intérêt dans le domaine des réseaux quantiques.

L'idée de combiner les centres isoélectroniques à d'autres matériaux étudiés pour réaliser un ordinateur quantique, mais ne fournissant pas d'interfaces optiques, semble également prometteuse. Les paires d'azote dans le GaAs ou encore de béryllium dans le silicium pourraient être combinées à un qubit de spin lié à une boîte quantique définie électrostatiquement dans ces matériaux. Dans ce contexte, il serait utile d'explorer le contrôle électrique d'un spin lié à un centre isoélectronique pour que celui-ci serve d'intermédiaire entre un qubit contrôlé électriquement et un qubit volant.

En conclusion, il sera intéressant de suivre dans les prochaines années les développements dans le domaine effervescent du traitement de l'information quantique, en particulier quels systèmes ou quelles combinaisons de systèmes permettront de faire le pont entre les propositions fascinantes du domaine et des technologies bien réelles. À la lumière des résultats présentés dans cette thèse, il semble pertinent de poursuivre la recherche sur les centres isoélectroniques à cette fin.

RÉFÉRENCES

- [1] P. Shor, “Algorithms for quantum computation : discrete logarithms and factoring,” *Proceedings 35th Annual Symposium on Foundations of Computer Science*, p. 124–134, 1994.
- [2] L. K. Grover, “A fast quantum mechanical algorithm for database search,” *Proceedings of the twenty-eighth annual ACM symposium on Theory of computing - STOC '96*, p. 212–219, 1996.
- [3] C. H. Bennett et G. Brassard, “Quantum cryptography : Public key distribution and coin tossing,” *Theoretical Computer Science*, vol. 560, p. 7–11, 2014.
- [4] J. I. Cirac *et al.*, “Quantum State Transfer and Entanglement Distribution among Distant Nodes in a Quantum Network,” *Physical Review Letters*, vol. 78, no. 16, p. 3221–3224, 1997.
- [5] N. Gisin et R. Thew, “Quantum communication,” *Nature Photonics*, vol. 1, p. 165–171, 2007.
- [6] H. J. Kimble, “The quantum internet.” *Nature*, vol. 453, no. 7198, p. 1023–1030, 2008.
- [7] C. H. Bennett, G. Brassard, et N. D. Mermin, “Quantum cryptography without Bell’s theorem,” *Physical Review Letters*, vol. 68, no. 5, p. 557–559, 1992.
- [8] W. K. Wootters et W. H. Zurek, “A single quantum cannot be cloned,” *Nature*, vol. 299, no. 5886, p. 802–803, 1982.
- [9] K. De Greve, “Towards Solid-State Quantum Repeaters : Ultrafast, coherent control and spin-photon entanglement in charged InAs Quantum dots,” Thèse de doctorat , Stanford University, 2013.
- [10] A. K. Ekert, “Quantum cryptography based on Bell’s theorem,” *Physical Review Letters*, vol. 67, no. 6, p. 661–663, 1991.
- [11] H.-J. Briegel *et al.*, “Quantum Repeaters : The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication,” *Physical Review Letters*, vol. 81, no. 26, p. 5932–5935, 1998.
- [12] M. Zukowski *et al.*, “"Event-ready-detectors" Bell experiment via entanglement swapping,” *Physical Review Letters*, vol. 71, no. 26, p. 4287–4290, 1993.
- [13] C. H. Bennett *et al.*, “Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels,” *Physical Review Letters*, vol. 70, no. 13, p. 1895–1899, 1993.

- [14] J. I. Cirac *et al.*, “Distributed Quantum Computation over Noisy Channels,” *Physical Review A*, vol. 59, no. 6, p. 4249–4254, 1999.
- [15] L. M. Duan et C. Monroe, “Colloquium : Quantum networks with trapped ions,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, no. 2, p. 1209–1224, 2010.
- [16] W. B. Gao *et al.*, “Coherent manipulation, measurement and entanglement of individual solid-state spins using optical fields,” *Nature Photonics*, vol. 9, no. 6, p. 363–373, 2015.
- [17] D. P. DiVincenzo, “The Physical Implementation of Quantum Computation,” *Fortschritte der Physik*, vol. 48, no. 9-11, p. 771–783, 2000.
- [18] M. A. Nielsen et I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, 10th ed. New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2004.
- [19] J. Kelly *et al.*, “State preservation by repetitive error detection in a superconducting quantum circuit,” *Nature*, vol. 519, no. 7541, p. 66–69, 2015.
- [20] J. J. Pla *et al.*, “A single-atom electron spin qubit in silicon.” *Nature*, vol. 489, no. 7417, p. 541–545, 2012.
- [21] M. Veldhorst *et al.*, “An addressable quantum dot qubit with fault-tolerant control-fidelity,” *Nature Nanotechnology*, vol. 9, no. 12, p. 981–985, 2014.
- [22] M. Veldhorst *et al.*, “A Two Qubit Logic Gate in Silicon,” *Nature*, vol. 526, p. 410–414, 2015.
- [23] K. Saeedi *et al.*, “Room-Temperature Quantum Bit Storage Exceeding 39 Minutes Using Ionized Donors in Silicon-28,” *Science*, vol. 342, no. 6160, p. 830–833, 2013.
- [24] C. C. Lo *et al.*, “Hybrid optical-electrical detection of donor electron spins with bound excitons in silicon,” *Nature materials*, vol. 14, p. 490–494, 2015.
- [25] D. D. Awschalom *et al.*, “Quantum Spintronics : Engineering and Manipulating Atom-Like Spins in Semiconductors,” *Science*, vol. 339, no. 6124, p. 1174–1179, 2013.
- [26] T. D. Ladd *et al.*, “Quantum computers.” *Nature*, vol. 464, no. 7285, p. 45–53, 2010.
- [27] A. Reiserer et G. Rempe, “Cavity-based quantum networks with single atoms and optical photons,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 87, no. 4, p. 1379–1418, 2015.
- [28] M. Atatüre *et al.*, “Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity,” *Science*, vol. 312, p. 551–553, 2006.
- [29] D. Press *et al.*, “Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses.” *Nature*, vol. 456, no. 7219, p. 218–221, 2008.
- [30] K. De Greve *et al.*, “Coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit,” *Nature Physics*, vol. 7, no. 11, p. 5, 2011.

- [31] A. Delteil *et al.*, “Observation of quantum jumps of a single quantum dot spin using submicrosecond single-shot optical readout,” *Physical Review Letters*, vol. 112, no. 11, p. 116802, 2014.
- [32] K. De Greve *et al.*, “Quantum-dot spin–photon entanglement via frequency downconversion to telecom wavelength,” *Nature*, vol. 491, p. 421, 2012.
- [33] W. B. Gao *et al.*, “Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon.” *Nature*, vol. 491, no. 7424, p. 426–30, 2012.
- [34] J. R. Schaibley *et al.*, “Demonstration of quantum entanglement between a single electron spin confined to an InAs quantum dot and a photon,” *Physical Review Letters*, vol. 110, no. 16, p. 167401, 2013.
- [35] W. B. Gao *et al.*, “Quantum teleportation from a propagating photon to a solid-state spin qubit.” *Nature communications*, vol. 4, p. 2744, 2013.
- [36] T. H. Stievater *et al.*, “Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 87, no. 13, p. 133603, 2001.
- [37] H. Kamada *et al.*, “Exciton Rabi oscillation in a single quantum dot.” *Physical review letters*, vol. 87, no. 24, p. 246401, 2001.
- [38] H. Htoon *et al.*, “Interplay of Rabi oscillations and quantum interference in semiconductor quantum dots.” *Physical review letters*, vol. 88, no. 8, p. 087401, 2002.
- [39] K. L. Silverman *et al.*, “Direct measurement of polarization resolved transition dipole moment in InGaAs/GaAs quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 82, no. 25, p. 4552–4554, 2003.
- [40] Q. Q. Wang *et al.*, “Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 72, no. 3, p. 035306, 2005.
- [41] K. Kuroda *et al.*, “Final-state readout of exciton qubits by observing resonantly excited photoluminescence in quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 5, p. 051909, 2007.
- [42] R. Melet *et al.*, “Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime,” *Physical Review B*, vol. 78, no. 7, p. 073301, 2008.
- [43] J. P. Reithmaier *et al.*, “Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system.” *Nature*, vol. 432, no. 7014, p. 197–200, 2004.
- [44] C. Arnold *et al.*, “Macroscopic rotation of photon polarization induced by a single spin.” *Nature communications*, vol. 6, no. 3, p. 6236, 2015.

- [45] S. Sun *et al.*, “A quantum phase switch between a single solid-state spin and a photon,” *Nature Nanotechnology*, vol. 11, p. 539–544, 2016.
- [46] M. Grundmann *et al.*, “Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots,” *Physical Review Letters*, vol. 74, no. 20, p. 4043–4046, 1995.
- [47] F. Jelezko et J. Wrachtrup, “Single defect centres in diamond : A review,” *Physica Status Solidi (a)*, vol. 203, no. 13, p. 3207–3225, 2006.
- [48] F. Jelezko *et al.*, “Observation of coherent oscillation of a single nuclear spin and realization of a two-qubit conditional quantum gate,” *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 13, p. 130501, 2004.
- [49] H. Bernien *et al.*, “Heralded entanglement between solid-state qubits separated by three metres,” *Nature*, vol. 497, no. 7447, p. 86–90, 2013.
- [50] B. Hensen *et al.*, “Loophole-free Bell inequality violation using electron spins separated by 1.3 kilometres,” *Nature*, vol. 526, no. 7575, p. 682–686, 2015.
- [51] W. Pfaff *et al.*, “Unconditional quantum teleportation between distant solid-state qubits,” *Science*, vol. 345, no. 6196, p. 532–535, 2014.
- [52] G. Balasubramanian *et al.*, “Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond.” *Nature materials*, vol. 8, no. 5, p. 383–7, 2009.
- [53] C. Santori *et al.*, “Nanophotonics for quantum optics using nitrogen-vacancy centers in diamond,” *Nanotechnology*, vol. 21, no. 27, p. 274008, 2010.
- [54] T. Gaebel *et al.*, “Room-temperature coherent coupling of single spins in diamond,” *Nature Physics*, vol. 2, no. 6, p. 408–413, 2006.
- [55] W. F. Koehl *et al.*, “Room temperature coherent control of defect spin qubits in silicon carbide,” *Nature*, vol. 479, no. 7371, p. 84–87, 2011.
- [56] M. Widmann *et al.*, “Coherent control of single spins in silicon carbide at room temperature.” *Nature materials*, vol. 14, p. 164–168, 2014.
- [57] D. Christle, A. Falk, et P. Andrich, “Isolated electron spins in silicon carbide with millisecond-coherence times,” *Nature materials*, vol. 14, no. 2, p. 160–163, 2014.
- [58] O. V. Zwiher *et al.*, “All-optical coherent population trapping with defect spin ensembles in silicon carbide.” *Scientific reports*, vol. 5, p. 10931, 2015.
- [59] R. Hanson, O. Gywat, et D. D. Awschalom, “Room-temperature manipulation and decoherence of a single spin in diamond,” *Physical Review B*, vol. 74, no. 16, p. 161203, 2006.

- [60] A. Muller *et al.*, “Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical stark effect,” *Physical Review Letters*, vol. 103, no. 21, p. 217402, 2009.
- [61] D. G. Thomas et J. J. Hopfield, “Isoelectronic traps due to nitrogen in gallium phosphide,” *Physical Review*, vol. 150, no. 2, p. 680–689, 1966.
- [62] J. J. Hopfield, D. G. Thomas, et R. T. Lynch, “Isoelectronic donors and acceptors,” *Physical Review Letters*, vol. 17, no. 6, p. 312–315, 1967.
- [63] F. A. Trumbore, M. Gershenson, et D. G. Thomas, “Luminescence due to the isoelectronic substitution of bismuth for phosphorus in gallium phosphide,” *Applied Physics Letters*, vol. 9, no. 1, p. 4–6, 1966.
- [64] D. Wolford *et al.*, “The Nitrogen Isoelectronic Trap in GaAs,” *Proceedings of the 17th International Conference on the Physics of Semiconductors*, p. 627–630, 1985.
- [65] X. Liu *et al.*, “Nitrogen pair luminescence in GaAs,” *Applied Physics Letters*, vol. 56, no. 15, p. 1451–1453, 1990.
- [66] S. Francoeur *et al.*, “Bi isoelectronic impurities in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 77, no. 8, p. 085209, 2008.
- [67] M. Jo *et al.*, “Visible single-photon emission from a nitrogen impurity center in AlAs,” *Applied Physics Letters*, vol. 102, no. 6, p. 062107, 2013.
- [68] A. Muller *et al.*, “Time-resolved photoluminescence spectroscopy of individual Te impurity centers in ZnSe,” *Physical Review B*, vol. 73, no. 8, p. 081306, 2006.
- [69] J. L. Merz, “Isoelectronic oxygen trap in ZnTe,” *Physical Review*, vol. 176, no. 3, p. 961–968, 1968.
- [70] M. Seong, I. Miotkowski, et a. Ramdas, “Isoelectronic impurities in II-VI semiconductors : ZnTe doped with Ca, Sr, and Ba,” *Physical Review B*, vol. 59, no. 20, p. 12911–12916, 1999.
- [71] T. Ishikawa *et al.*, “Zeeman photoluminescence spectroscopy of isoelectronic beryllium pairs in silicon,” *Solid State Communications*, vol. 150, no. 37-38, p. 1827–1830, 2010.
- [72] T. Kuroda *et al.*, “Symmetric quantum dots as efficient sources of highly entangled photons : Violation of Bell’s inequality without spectral and temporal filtering,” *Physical Review B*, vol. 88, no. 4, p. 041306, 2013.
- [73] M. V. G. Dutt *et al.*, “Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond,” *Science*, vol. 316, no. 5829, p. 1312–1316, 2007.
- [74] P. R. C. Kent et A. Zunger, “Theory of electronic structure evolution in GaAsN and GaPN alloys,” *Physical Review B*, vol. 64, no. 11, p. 115208, 2001.

- [75] J. W. Allen, “Energy levels of nitrogen-nitrogen pairs in gallium phosphide,” *J. Phys. C*, vol. 1, p. 1136–1138, 1968.
- [76] M. Felici *et al.*, “Free carrier and/or exciton trapping by nitrogen pairs in dilute GaP 1-xN x,” *Physical Review B*, vol. 71, no. 4, p. 1–6, 2005.
- [77] R. A. Faulkner, “Toward a theory of isoelectronic impurities in semiconductors,” *Physical Review*, vol. 175, no. 3, p. 991–1009, 1968.
- [78] B. Gil et H. Mariette, “NN2 trap in GaP : A reexamination,” *Phys. Rev. B*, vol. 35, no. 15, p. 7999, 1987.
- [79] B. Gil *et al.*, “Local symmetry of nitrogen pairs in GaP,” *Physical Review B*, vol. 33, no. 4, p. 2690–2700, 1986.
- [80] R. Schwabe *et al.*, “Photoluminescence of nitrogen-doped VPE GaAs,” *Solid State Communications*, vol. 55, no. 2, p. 167–173, 1985.
- [81] X. Liu, M. E. Pistol, et L. Samuelson, “Excitons bound to nitrogen pairs in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 42, no. 12, p. 7504–7512, 1990.
- [82] S. Francoeur, J. F. Klem, et A. Mascarenhas, “Optical spectroscopy of single impurity centers in semiconductors,” *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 6, p. 067403, 2004.
- [83] D. Karaiskaj *et al.*, “Ultrannarrow photoluminescence transitions of nitrogen cluster bound excitons in dilute GaAsN,” *Physical Review B*, vol. 74, no. 3, p. 035208, 2006.
- [84] S. Marcet *et al.*, “Single nitrogen dyad magnetoluminescence in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 80, no. 24, p. 245404, 2009.
- [85] M. Ikezawa, Y. Sakuma, et Y. Masumoto, “Single photon emission from individual nitrogen pairs in GaP,” *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 46, no. 36-40, p. L871–L873, 2007.
- [86] G. Éthier-Majcher *et al.*, “Photoluminescence from single nitrogen isoelectronic centers in gallium phosphide produced by ion implantation,” *Journal of Applied Physics*, vol. 114, no. 3, p. 034307, 2013.
- [87] S. Marcet, R. André, et S. Francoeur, “Excitons bound to Te isoelectronic dyads in ZnSe,” *Physical Review B*, vol. 82, no. 23, p. 235309, 2010.
- [88] S. Francoeur et S. Marcet, “Effects of symmetry-breaking perturbations on excitonic states bound to systems of reduced symmetry,” *Journal of Applied Physics*, vol. 108, no. 4, p. 043710, 2010.
- [89] C. Ouellet-Plamondon *et al.*, “Excitonic fine structure of out-of-plane nitrogen dyads in GaAs,” *Journal of Luminescence*, vol. 131, no. 11, p. 2339–2341, 2011.

- [90] J. M. Luttinger, “Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors-General Theory,” *Phys. Rev.*, vol. 102, no. 4, p. 1030–1041, 1956.
- [91] Q. X. Zhao et B. Monemar, “Electronic structure of the substitutional nitrogen NN1 pair in GaP from photoluminescence excitation and Zeeman spectroscopy,” *Physical Review B*, vol. 38, no. 2, p. 1397–1405, 1988.
- [92] M. Bayer *et al.*, “Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 65, no. 19, p. 195315, 2002.
- [93] H. W. Van Kesteren *et al.*, “Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells,” *Physical Review B*, vol. 41, no. 8, p. 5283–5292, 1990.
- [94] S. B. Nam *et al.*, “Free-exciton energy spectrum in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 13, no. 2, p. 761–767, 1976.
- [95] S. N. Walck et T. L. Reinecke, “Exciton diamagnetic shift in semiconductor nanostructures,” *Physical Review B*, vol. 57, no. 15, p. 9088–9096, 1998.
- [96] S. Marcet *et al.*, “Charged excitons and biexcitons bound to isoelectronic centers,” *Physical Review B*, vol. 82, no. 23, p. 235311, 2010.
- [97] Y. J. Fu *et al.*, “Anomalous diamagnetic shift for negative trions in single semiconductor quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 81, no. 11, p. 113307, 2010.
- [98] N. H. Bonadeo *et al.*, “Coherent Optical Control of the Quantum State of a Single Quantum Dot,” *Science*, vol. 282, no. 5393, p. 1473–1476, 1998.
- [99] A. J. Ramsay *et al.*, “Damping of exciton rabi rotations by acoustic phonons in optically excited InGaAs/GaAs quantum dots,” *Physical Review Letters*, vol. 104, no. 1, p. 017402, 2010.
- [100] A. Bambini et P. R. Berman, “Analytic solutions to the two-state problem for a class of coupling potentials,” *Physical Review A*, vol. 23, no. 5, p. 2496–2501, 1981.
- [101] G. Éthier-Majcher *et al.*, “Complete quantum control of exciton qubits bound to isoelectronic centres.” *Nature communications*, vol. 5, p. 3980, 2014.
- [102] P. St-Jean, G. Éthier-Majcher, et S. Francoeur, “Dynamics of excitons bound to nitrogen isoelectronic centers in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 91, no. 11, p. 115201, 2015.
- [103] G. Boso *et al.*, “Fast-gating of single-photon avalanche diodes with 200 ps transitions and 30 ps timing jitter,” *Sensors and Actuators, A : Physical*, vol. 191, p. 61–67, 2013.

- [104] S. Marcet, C. Ouellet-Plamondon, et S. Francoeur, “High spatial resolution confocal microscope with independent excitation and detection scanning capabilities,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 80, no. 6, p. 063101, 2009.
- [105] W. A. Coish et J. Baugh, “Nuclear spins in nanostructures,” *Physica Status Solidi (B) Basic Research*, vol. 246, no. 10, p. 2203–2215, 2009.
- [106] L. Robledo *et al.*, “Control and coherence of the optical transition of single nitrogen vacancy centers in diamond,” *Physical Review Letters*, vol. 105, no. 17, p. 177403, 2010.
- [107] L. Andreani, G. Panzarini, et J.-M. Gérard, “Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory,” *Physical Review B*, vol. 60, no. 19, p. 13 276–13 279, 1999.
- [108] R. Mathew *et al.*, “Subpicosecond adiabatic rapid passage on a single semiconductor quantum dot : Phonon-mediated dephasing in the strong-driving regime,” *Physical Review B*, vol. 90, no. 3, p. 035316, 2014.
- [109] F. Beaudoin et W. A. Coish, “Microscopic models for charge-noise-induced dephasing of solid-state qubits,” *Physical Review B*, vol. 91, no. 16, p. 165432, 2015.
- [110] X. Xu *et al.*, “Coherent Optical Spectroscopy of a Strongly Driven Quantum Dot - Supporting Online Material,” *Science*, vol. 317, no. 5840, p. 929, 2007.
- [111] G. Jundt *et al.*, “Observation of dressed excitonic states in a single quantum dot,” *Physical Review Letters*, vol. 100, no. 17, p. 177401, 2008.
- [112] A. Muller *et al.*, “Emission spectrum of a dressed exciton-biexciton complex in a semiconductor quantum dot,” *Physical Review Letters*, vol. 101, no. 2, p. 027401, 2008.
- [113] M. Kroner *et al.*, “Rabi splitting and ac-Stark shift of a charged exciton,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 3, p. 031108, 2008.
- [114] B. D. Gerardot *et al.*, “Dressed excitonic states and quantum interference in a three-level quantum dot ladder system,” *New Journal of Physics*, vol. 11, no. 1, p. 013028, 2009.
- [115] E. B. Flagg *et al.*, “Resonantly driven coherent oscillations in a solid-state quantum emitter,” *Nature Physics*, vol. 5, no. 3, p. 203–207, 2009.
- [116] A. N. Vamivakas *et al.*, “Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence,” *Nature Physics*, vol. 5, no. 3, p. 198–202, 2009.
- [117] E. B. Flagg et G. S. Solomon, “Optical spin readout method in a quantum dot using the ac Stark effect,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 24, p. 245309, 2015.
- [118] A. J. Ramsay, “Passive stabilization of a hole spin qubit using the optical Stark effect,” *Physical Review B*, vol. 93, no. 7, p. 1–6, 2016.

- [119] J. Dalibard et C. Cohen-Tannoudji, “Dressed-atom approach to atomic motion in laser light : the dipole force revisited,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 2, no. 11, p. 1707, 1985.
- [120] A. J. Ramsay, “A review of the coherent optical control of the exciton and spin states of semiconductor quantum dots,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 25, no. 10, p. 103001, 2010.
- [121] B. R. Mollow, “Power spectrum of light scattered by two-level systems,” *Physical Review*, vol. 188, no. 5, p. 1969–1975, 1969.
- [122] S. H. Autler et C. H. Townes, “Stark effect in rapidly varying fields,” *Physical Review*, vol. 100, no. 2, p. 703–722, 1955.
- [123] M. J. Stanley *et al.*, “Dynamics of a mesoscopic nuclear spin ensemble interacting with an optically driven electron spin,” *Physical Review B*, vol. 90, no. 19, p. 195305, 2014.
- [124] C. H. H. Schulte *et al.*, “Quadrature squeezed photons from a two-level system.” *Nature*, vol. 525, no. 7568, p. 222–225, 2015.
- [125] S. E. Harris, “Refractive-index control with strong fields.” *Optics letters*, vol. 19, no. 23, p. 2018–2020, 1994.
- [126] A. Vamivakas *et al.*, “Observation of spin-dependent quantum jumps via quantum dot resonance fluorescence.” *Nature*, vol. 467, no. 7313, p. 297–300, 2010.
- [127] K. Sanaka *et al.*, “Indistinguishable photons from independent semiconductor nanostructures,” *Physical Review Letters*, vol. 103, no. 5, p. 053601, 2009.
- [128] K. De Greve *et al.*, “Photon antibunching and magnetospectroscopy of a single fluorine donor in ZnSe,” *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 24, p. 241913, 2010.
- [129] K. Sanaka *et al.*, “Entangling single photons from independently tuned semiconductor nanoemitters,” *Nano Letters*, vol. 12, no. 9, p. 4611–4616, 2012.
- [130] D. J. Sleiter *et al.*, “Optical pumping of a single electron spin bound to a fluorine donor in a ZnSe nanostructure,” *Nano Letters*, vol. 13, no. 1, p. 116–120, 2013.
- [131] R. Vrijen et E. Yablonovitch, “A spin-coherent semiconductor photo-detector for quantum communication,” *Physica E*, vol. 10, no. 4, p. 569–575, 2001.
- [132] T. Calarco *et al.*, “Spin-based all-optical quantum computation with quantum dots : Understanding and suppressing decoherence,” *Physical Review A*, vol. 68, no. 1, p. 012310, 2003.
- [133] D. Sleiter et W. F. Brinkman, “Using holes in GaAs as qubits : An estimate of the Rabi frequency in the presence of an external rf field,” *Physical Review B*, vol. 74, no. 15, p. 153312, 2006.

- [134] Y. H. Huo *et al.*, “A light-hole exciton in a quantum dot,” *Nature Physics*, vol. 10, no. 1, p. 46–51, 2014.
- [135] G. Éthier-Majcher, P. St-Jean, et S. Francoeur, “Light- and heavy-hole trions bound to isoelectronic centers,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 15, p. 155436, 2015.
- [136] Y. Léger *et al.*, “Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 76, no. 4, p. 045331, 2007.
- [137] S. Ohno *et al.*, “Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots,” *Applied Physics Letters*, vol. 98, no. 16, p. 161912, 2011.
- [138] C. Tonin *et al.*, “Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 85, no. 15, p. 155303, 2012.
- [139] V. A. Karasyuk *et al.*, “Fourier-transform magnetophotoluminescence spectroscopy of donor-bound excitons in GaAs,” *Physical Review B*, vol. 49, no. 23, p. 16 381–16 397, 1994.
- [140] C. Weisbuch et C. Hermann, “Optical detection of conduction-electron spin resonance in GaAs, Ga_{1-x}In_xAs, and Ga_{1-x}Al_xAs,” *Physical Review B*, vol. 15, no. 2, p. 816–822, 1977.
- [141] A. A. Freschi et J. Frejlich, “Adjustable phase control in stabilized interferometry,” *Optics Letters*, vol. 20, no. 6, p. 635–637, 1995.
- [142] H. Iwai *et al.*, “Quantitative phase imaging using actively stabilized phase-shifting low-coherence interferometry,” *Optics letters*, vol. 29, no. 20, p. 2399–2401, 2004.

ANNEXE A Interféromètre stabilisé en phase

Pour stabiliser un interféromètre de Michelson avec un contrôle précis sur la phase entre ses deux bras (ou sur sa différence de marche), le montage présenté à la figure A.1 est réalisé [141, 142]. Le signal d'interférence généré par un laser HeNe de contrôle et mesuré par une photodiode permet d'ajuster finement et activement la position d'un miroir piézo-électrique et ainsi d'ajuster le délai entre deux impulsions du laser pulsé. Une plateforme de translation permet de générer des délais grossiers de l'ordre de plusieurs picosecondes.

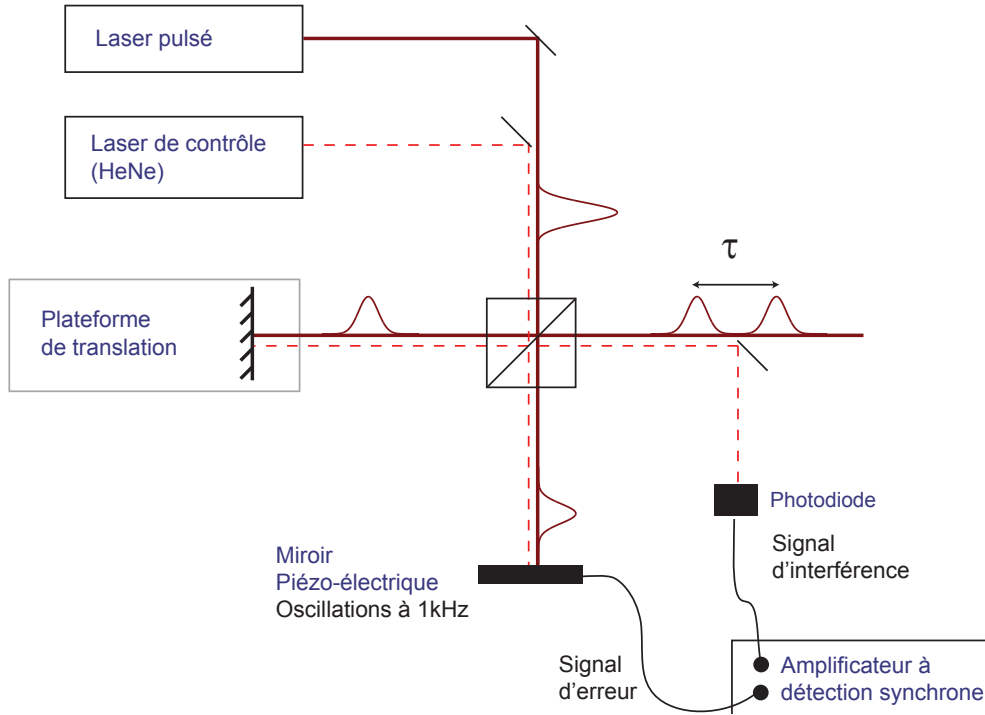


Figure A.1 Schéma d'un interféromètre stabilisé activement.

Un amplificateur à détection synchrone permet de générer un signal d'erreur proportionnel à la phase de l'interféromètre. La figure A.2 illustre les branchements de l'amplificateur HF2LI de *Zurich Instruments* utilisé. L'amplificateur génère d'abord un signal à la fréquence $\Omega = 1$ kHz et d'amplitude $A = 20$ mV faisant osciller le miroir piézo-électrique. Le signal d'interférence capté par la photo-diode s'écrit de la façon suivante

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos(\phi(t) + A \sin(\Omega t)) \quad (\text{A.1})$$

où $\phi(t)$ est la phase de l'interféromètre qui est sujette à des fluctuations. Ce signal peut

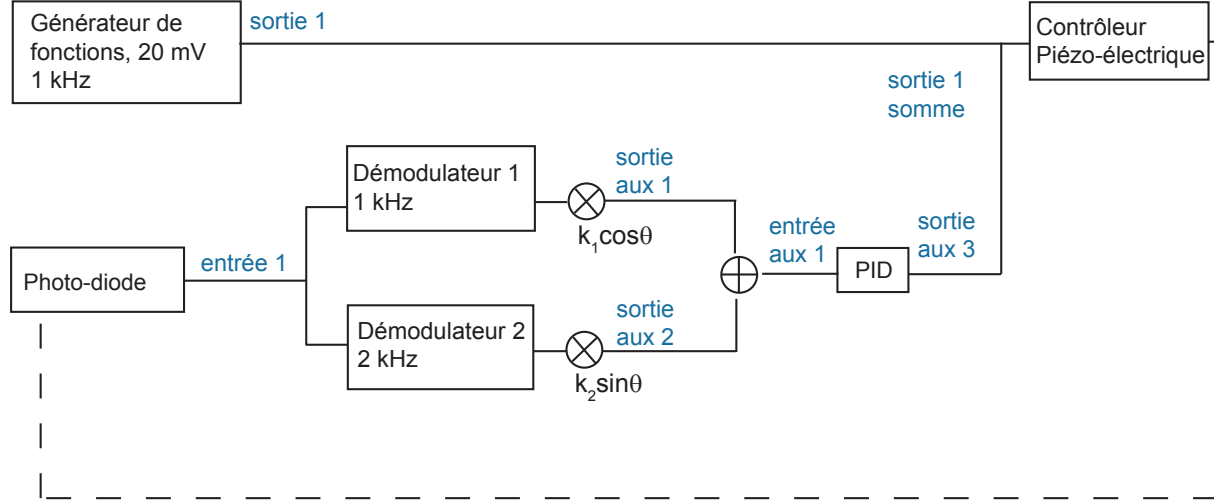


Figure A.2 Branchements de l'amplificateur à détection synchrone HF2LI permettant de stabiliser l'interféromètre. Les entrées et sorties de l'amplificateur utilisées sont indiquées en bleu.

être exprimé à l'aide d'une expansion de Fourier-Bessel en une somme de signaux ayant des fréquences de $n\Omega$, où n est un entier. Les deux premières harmoniques sont données par

$$\begin{aligned} I^\Omega &= 4J_1(A)\sqrt{I_1 I_2} \sin(\phi(t)) \sin(\Omega t) \\ I^{2\Omega} &= 4J_2(A)\sqrt{I_1 I_2} \cos(\phi(t)) \cos(2\Omega t), \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

où J_n sont les fonctions de Bessel de première espèce. Ces deux signaux sont démodulés par l'amplificateur et les tensions obtenues sont les suivantes :

$$\begin{aligned} V_1(t) &= 4J_1(A)\sqrt{I_1 I_2} \sin(\phi(t)) \\ V_2(t) &= 4J_2(A)\sqrt{I_1 I_2} \cos(\phi(t)). \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

En multipliant V_1 et V_2 par les constantes k_1 et k_2 , il est possible de générer les deux signaux d'égales amplitudes suivants :

$$\begin{aligned} V'_1(t) &= k_1 V_1(t) = V_0 \sin(\phi(t)) \\ V'_2(t) &= k_2 V_2(t) = V_0 \cos(\phi(t)). \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Cette multiplication est réalisée par l'amplificateur, tel qu'illustré à la figure A.2. L'ajustement des constantes k_1 et k_2 est réalisé en mesurant les signaux V'_1 et V'_2 à l'aide d'un oscilloscope en mode XY. Les constantes sont calibrées adéquatement si le signal décrit un

cercle lorsque la phase ϕ varie.

Un signal d'erreur dépendant de la phase ciblée θ est obtenu en effectuant l'opération suivante

$$V_e(t) = \cos \theta V_1'(t) - \sin \theta V_2'(t). \quad (\text{A.5})$$

Les multiplications sont de nouveau réalisées par l'amplificateur et les signaux obtenus sont recueillis aux bornes de deux sorties auxiliaires de l'amplificateur puis additionnés. Le signal d'erreur peut être réécrit de la façon suivante

$$V_e(t) = V_0 \sin(\phi(t) - \theta). \quad (\text{A.6})$$

Celui-ci est ensuite retourné à l'amplificateur par une entrée auxiliaire (aux 1). La dernière étape consiste à utiliser un contrôleur PID de l'amplificateur à détection synchrone pour générer une tension annulant le signal d'erreur. Cette tension est ajoutée au signal à 1 kHz appliqué au miroir piézo-électrique.

La figure A.3 démontre la stabilisation de l'interféromètre à des phases différentes. L'intensité du laser HeNe est mesurée à la sortie de l'interféromètre en fonction du temps. Pour des temps inférieurs à 11 minutes, la phase θ est changée par bonds de 20° . Des plateaux sont très bien résolus à la figure A.3, ce qui démontre une stabilisation de la phase; l'écart-type sur les fluctuations de la phase pour un plateau donné est de 5° et est constant d'un plateau à l'autre. Les fluctuations en intensité, elles, varient en fonction du sinus de la phase centrale. Nous concluons ainsi que le délai entre deux impulsions est contrôlé avec une précision de 0.05 fs, ce qui est suffisant pour mesurer les franges d'interférence de Ramsey avec une bonne visibilité.

Lorsque la stabilisation est arrêtée (après 11 minutes), les fluctuations d'intensité deviennent beaucoup plus importantes et l'écart-type sur la phase approche 20° . De plus, il peut y avoir dérive de la phase dans le temps si celle-ci n'est pas stabilisée; il est donc nécessaire de maintenir la stabilisation active lors d'une mesure d'interférence de Ramsey.

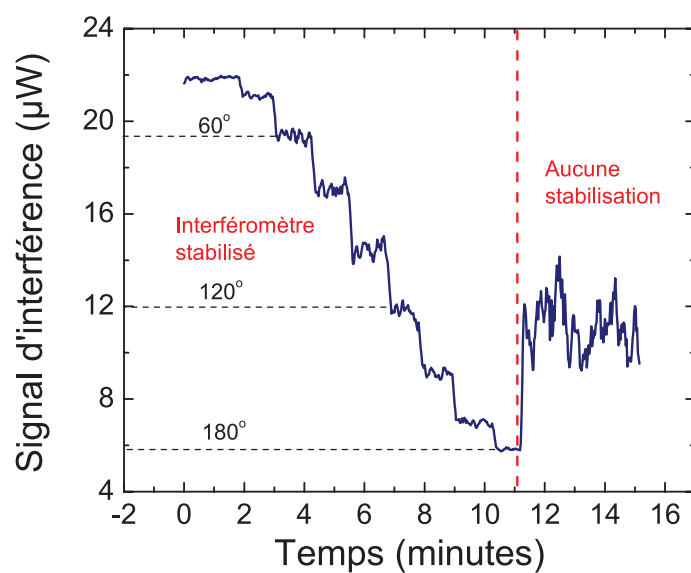


Figure A.3 Puissance du laser HeNe à la sortie de l'interféromètre en fonction du temps. Durant les 11 premières minutes, l'interféromètre est stabilisé à différentes phase par bond de 20° . Après 11 minutes, la stabilisation est arrêtée, montrant des fluctuations quatre fois plus importantes de la phase.

ANNEXE B Dérivation de l'hamiltonien C_s par la méthode des invariants

Dans cette annexe, l'hamiltonien de champ cristallin et l'hamiltonien d'interaction avec un champ magnétique sont dérivés pour un trou et un électron en symétrie C_s . L'hamiltonien d'un exciton à champ magnétique nul est également trouvé.

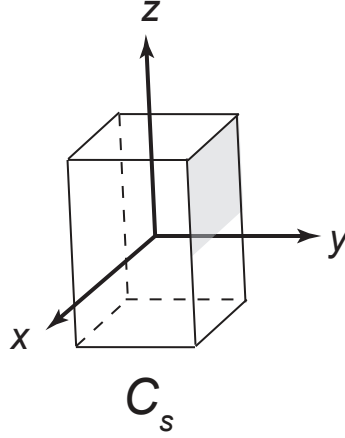


Figure B.1 Les seuls éléments de symétrie d'un objet C_s sont l'identité E et le plan miroir (plan yz).

Un objet de symétrie C_s est présenté à la figure B.1. Il n'existe que deux éléments de symétrie dans ce groupe ponctuel, l'identité E et le plan miroir yz . La table des caractères, donnée au tableau B.1 ne comporte donc que deux représentations unidimensionnelles. Les coordonnées y et z demeurent inchangés par l'élément de symétrie et se transforment comme Γ_1 ; la coordonnée x se transforme comme Γ_2 car elle est changée par le plan miroir. Les propriétés de transformation des moments cinétiques l_i ($l_x = yp_z - zp_y$, $l_y = zp_x - xp_z$, $l_z = xp_y - yp_x$) peuvent être obtenues grâce à la table de multiplication du groupe, donnée au tableau B.2 ($p_i \propto \frac{\partial}{\partial i}$ et se transforme comme i). Notons que les composantes du champ magnétique se transforment comme les moments cinétiques.

Tableau B.1 Table des caractères du groupe de symétrie C_s

C_s	E	σ_x	
Γ_1	1	1	y, z, l_x, B_x
Γ_2	1	-1	x, l_y, l_z, B_y, B_z

Tableau B.2 Table de multiplication du groupe de symétrie C_s

C_s	Γ_1	Γ_2
Γ_1	Γ_1	Γ_2
Γ_2	Γ_2	Γ_1

Un hamiltonien agissant sur l'électron, qui n'a que deux états de spin, est formé par un ensemble de 4 matrices 2 x 2 linéairement indépendantes : la matrice identité et les matrices de Pauli. Les représentations des matrices de Pauli sont données au tableau B.3. Un hamiltonien agissant sur les 4 états de moment cinétique d'un trou est formé par un ensemble de 16 matrices 4 x 4 linéairement indépendantes. La matrice identité, les opérateurs de spin 3/2 (J_x, J_y et J_z), et des puissances supérieures de ces opérateurs forment cet ensemble de matrices. Les propriétés de transformation des matrices 4 x 4 et de la matrice identité I sont également données au tableau B.3. Les éléments dans la colonne K^+ sont invariants sous l'inversion temporelle, alors que les éléments K^- sont inversés sous l'inversion temporelle.

Tableau B.3 Représentation des matrices 4 x 4 et 2 x 2 linéairement indépendantes en symétrie C_s . K^\pm indique la symétrie temporelle.

	K^+	K^-
Γ_1	I, J_x^2, J_y^2, J_z^2 $\{J_y, J_z\}$	J_x, σ_x $J_x^3, \{J_x, \{J_y, J_z\}\}, \{J_x, (J_y^2 - J_z^2)\}$
Γ_2	$\{J_x, J_y\}, \{J_x, J_z\}$	$J_y, J_z, \sigma_y, \sigma_z$ $J_y^3, J_z^3, \{J_y, (J_z^2 - J_x^2)\}, \{J_z, (J_x^2 - J_y^2)\}$

L'hamiltonien de champ cristallin n'est composé que des opérateurs invariants au tableau B.3, c'est-à-dire des éléments se transformant selon Γ_1 et K^+ . Le seul opérateur invariant agissant sur l'électron est la matrice identité ; le champ cristallin subit par l'électron peut donc être ignoré. L'hamiltonien de champ cristallin pour le trou comprend les termes invariants suivants :

$$H_{CF} = \sum_{x,y,z} v_i J_i^2 + v_{yz} \{J_y, J_z\}, \quad (\text{B.1})$$

où les v_i et v_{yz} sont des paramètres.

Pour déterminer les hamiltoniens sous champ magnétique, il suffit d'effectuer les produits des représentations de toutes les matrices au tableau B.3 avec toutes les composantes du

champ magnétique au tableau B.1 ; seuls les termes invariants sont conservés. L'hamiltonien d'un électron sous un champ magnétique appliqué selon x ne comporte que deux invariants et s'écrit

$$H_{Bxe} = c_{1x}\sigma_x B_x + c_{2x}B_x^2, \quad (\text{B.2})$$

où les c_i sont des coefficients. L'hamiltonien du trou sous un champ appliqué selon x s'écrit en fonction des coefficients h_i

$$\begin{aligned} H_{Bxh} = & \left(h_{1x}J_x + h_{2x}J_x^3 + h_{3x}\{J_x, \{J_y, J_z\}\} + h_{4x}\{J_x, J_y^2 - J_z^2\} \right) B_x \\ & + \left(h_{5x}J_x^2 + h_{6x}J_y^2 + h_{7x}J_z^2 + h_{8x}\{J_y, J_z\} \right) B_x^2. \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Puisque B_y et B_z se transforment de la même façon, nous ne considérons que le cas où le champ est appliqué selon z , le cas selon y étant équivalent. L'hamiltonien de l'électron s'écrit pour un champ appliqué selon z

$$H_{Bze} = (c_{1z}\sigma_z + c_{3z}\sigma_y) B_z + c_{2z}B_z^2 \quad (\text{B.4})$$

et l'hamiltonien du trou est donné par

$$\begin{aligned} H_{Bzh} = & (h_{1z}J_z + h_{2z}J_y + h_{3z}J_z^3 + h_{4z}J_y^3 \\ & + h_{5z}\{J_y, \{J_z^2 - J_x^2\}\} + h_{6z}\{J_z, J_x^2 - J_y^2\}) B_z \\ & + \left(h_{7z}J_x^2 + h_{8z}J_y^2 + h_{9z}J_z^2 + h_{10z}\{J_y, J_z\} \right) B_z^2. \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Finalement, l'hamiltonien d'échange électron-trou est donné par l'ensemble des matrices 2 x 2 et 4 x 4 dont le produit est invariant. Il s'écrit en fonction des paramètres d'échange a_i de la façon suivante

$$\begin{aligned} H_{EX} = & \left(a_1J_x + a_2J_x^3 + a_3\{J_x, \{J_y, J_z\}\} + a_4\{J_x, J_y^2 - J_z^2\} \right) \sigma_x \\ & + \left(a_5J_y + a_6J_z + a_7J_y^3 + a_8J_z^3 + a_9\{J_y, \{J_z^2 - J_x^2\}\} + a_{10}\{J_z, J_x^2 - J_y^2\} \right) \sigma_y \\ & + \left(a_{11}J_y + a_{12}J_z + a_{13}J_y^3 + a_{14}J_z^3 + a_{15}\{J_y, \{J_z^2 - J_x^2\}\} + a_{16}\{J_z, J_x^2 - J_y^2\} \right) \sigma_z. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$