



**HAL**  
open science

# Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique

Emmanuel Moreau

► **To cite this version:**

Emmanuel Moreau. Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002. Français. NNT: . tel-00006244

**HAL Id: tel-00006244**

**<https://theses.hal.science/tel-00006244>**

Submitted on 18 Jun 2004

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**THESE DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITE PARIS VI**

Spécialité : Physique du Solide

présentée et soutenue publiquement par  
**M Emmanuel MOREAU**

Pour obtenir le grade de  
DOCTEUR de l'UNIVERSITE PARIS VI

le IV Novembre 2002

**Etude d'une source solide monomode  
de photons uniques constituée  
par une boîte quantique semi-conductrice  
dans une microcavité optique**

devant le jury composé de :

<b>Izo ABRAM</b>	Invité
<b>Vincent BERGER</b>	Rapporteur
<b>Claude FABRE</b>	Président
<b>Andrea FIORE</b>	
<b>Jean-Michel GERARD</b>	Directeur de Thèse
<b>Hervé RIGNEAULT</b>	Rapporteur



# Remerciements

Je tiens bien entendu à remercier les nombreuses personnes ayant contribué à ce travail de thèse, et plus généralement tous ceux qui ont rendu si agréable mon séjour au laboratoire LPN. C'est également à tous mes amis et à ma famille que s'adressent ces remerciements, pour m'avoir soutenu pendant toutes ces années.

Ce travail de thèse a été réalisé au laboratoire LPN dirigé par Jean-Yves Marzin. Je tiens à remercier Claude Fabre qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse. Je suis très reconnaissant à Vincent Berger et à Hervé Rigneault d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail de thèse. J'ai également beaucoup apprécié l'intérêt qu'a porté Andrea Fiore à mon travail.

Je remercie très chaleureusement Izo Abram, d'une part pour m'avoir toujours encouragé à mener ce travail de thèse jusqu'à son terme (ce qui n'était pas évident compte tenu de ma nouvelle orientation de carrière) et d'autre part pour la patience et la pédagogie avec lesquelles il fait partager son savoir. J'ai réellement apprécié le sens physique d'Izo, notamment dans le domaine de l'information quantique.

Bien entendu, c'est à Jean-Michel Gérard que je destine les plus vifs et sincères remerciements. Sa grande culture, sa connaissance du domaine et son intuition alliée à sa vivacité d'esprit (Qui, sinon lui, a rapidement vu qu'une boîte quantique en micropiliers pouvait constituer une source de photons uniques tout à fait remarquable?) en font un directeur de thèse passionnant. C'est un réel plaisir de travailler avec lui. Je lui suis particulièrement reconnaissant pour la confiance qu'il m'a toujours accordée, pour le souci constant qu'il a eu de valoriser mon travail de thèse et, lors de l'approche de la soutenance, pour avoir toujours décroché le téléphone pour répondre à mes angoisses de thésard. Jean-Michel a été un directeur de thèse, mais aussi une personnalité, qui m'a profondément marqué.

Je ne saurai jamais assez remercier Isabelle Robert pour son extrême disponibilité,

sa gentillesse, son enthousiasme et toutes ses qualités qui rendent le travail avec elle si agréable. Je me souviendrai toujours du montage de la manip de corrélation de photons et de ces heures passées à affiner les réglages. Non seulement Isa a été d'une aide précieuse pour la partie scientifique de ce travail de thèse, mais je lui dois aussi son organisation logistique. La poursuite de mon travail de thèse pendant mon stage en entreprise n'aurait pu se faire sans son soutien. Envoi d'articles, manips complémentaires, tirage des manuscrits,... Merci Isa, pour tout, et surtout pour ton amitié!

La présence de Bruno Gayral lors de mon stage de DEA, et au début de ma thèse, m'a permis de rapidement comprendre les subtilités de la manip de microphotoluminescence. J'ai eu beaucoup de plaisir à travailler avec lui et je pense avoir beaucoup appris à ses côtés. Merci d'être toujours revenu avec le sourire m'aider à "re-régler" la manip, que j'avais désaligné pour la n-ième fois.

J'ai également eu la chance de connaître Jacqueline Bloch. J'ai toujours apprécié de discuter avec elle, de physique ou autre, et je n'oublierai pas l'intérêt qu'elle a porté à mon travail de thèse, sur son avancement ou sur mes difficultés.

Je remercie bien sûr Isabelle Sagnes, qui a toujours été là pour me dépanner, à essayer de faire des pieds et des mains pour que tout se passe pour le mieux. Sa conception du travail scientifique reste également pour moi une source d'inspiration.

La présence de Bernard Jusserand a été très importante au long de ce travail de thèse. Les nombreuses conversations que j'ai eues avec lui, que ce soit de physique ou d'un autre sujet, m'ont beaucoup apporté. Enfin son aide au quotidien au labo m'a souvent été très précieuse.

Je n'oublierai pas que Paul Voisin, en plus d'avoir été mon tuteur à l'ENS, m'a toujours été de bon conseil, aussi bien scientifiquement que personnellement, et ne m'a jamais refusé de son temps.

Je tiens à remercier aussi Bernard Sermage, notamment pour sa disponibilité.

Depuis la croissance des échantillons jusqu'à la caractérisation optique, ce travail a bénéficié de l'aide et de l'expertise de nombreuses personnes, que je tiens à remercier sincèrement. Je remercie Laurent Couraud et Laurence Manin, leurs compétences en gravure ont permis à ce travail de thèse de bénéficier d'échantillons d'excellente qualité. Ces mêmes échantillons furent épitaxiés par Véronique Thierry-Mieg. Véro est une épitaxieuse hors-pair, mais je me souviendrai surtout de ses grandes qualités humaines.

Plus généralement, je remercie tout le L2M; toutes ces personnes qui m'y ont si

bien accueilli. La bonne ambiance qui y règne, et le savoir-faire exceptionnel des différentes personnes qui y travaillent en font un lieu “magique” où les plus extrêmes exploits technologiques sont possibles.

Je remercie en général les nombreuses personnes de Bagneux, et désormais Marcoussis, avec lesquelles j’ai sympathisé. J’ai passé des années très agréables grâce à eux.

Je pense aussi à mes camarades thésards ou ex-thésards. Je remercie en particulier Guillaume Saint-Girons pour son amitié et son aide précieuse en fin de thèse. Merci aussi à Julien Hours, avec qui j’ai eu le plaisir de travailler, et bonne chance pour la poursuite de ta thèse. Beaucoup de courage également pour Spyros, dont les coups de mains m’ont été fort utiles les derniers jours. Merci aussi à Clémentine, Kostia, Sabine, Houtaï,... Merci à tous!



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>2</b>
<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Sources à photons uniques</b>	<b>15</b>
1.1 Définition de la source à photons uniques . . . . .	15
1.2 Principe de la cryptographie quantique . . . . .	16
1.3 Intérêt des sources de photons uniques par rapport aux lasers atténués . . .	19
1.4 Application potentielle à l'ordinateur quantique . . . . .	22
1.5 Principe d'une source à un photon . . . . .	23
1.6 Emetteurs pour sources à photons uniques . . . . .	25
1.6.1 Molécules . . . . .	25
1.6.2 Centres N-V de nanocristaux de diamant . . . . .	26
1.6.3 Nanocristaux de CdSe/ZnS et boîtes quantiques . . . . .	27
<b>2 Boîtes quantiques uniques</b>	<b>29</b>
2.1 Propriétés générales . . . . .	29
2.1.1 Croissance des boîtes quantiques . . . . .	29
2.1.2 Propriétés de photoluminescence . . . . .	31
2.2 Spectroscopie d'une boîte quantique unique . . . . .	32
2.2.1 Isolation d'une unique boîte quantique . . . . .	32
2.2.2 Identification des raies d'émission . . . . .	34
2.2.2.1 Spectroscopie d'une boîte quantique en fonction de la puissance sous excitation pulsée . . . . .	34
2.2.2.2 Analyse de la dépendance en puissance sous excitation pulsée	36
2.2.2.3 Modélisation simple de la dépendance en puissance . . . . .	38



2.2.2.4	Spectroscopie et analyse en puissance sous excitation continue . . . . .	39
2.2.2.5	Modélisation simple de la dépendance en puissance . . . . .	41
2.3	Spectroscopie résolue en temps . . . . .	45
2.3.1	Mesures des temps de vie de l'exciton et du biexciton . . . . .	45
2.3.2	Evolution des intensités résolues en temps avec la puissance . . . . .	47
2.4	Largeur de raie excitonique et phénomène de déphasage . . . . .	49
2.5	Conclusion . . . . .	51
<b>3</b>	<b>Génération d'états quantiques de la lumière</b>	<b>53</b>
3.1	Dégroupement de photons pour une boîte quantique unique . . . . .	53
3.1.1	Principe et historique du dégroupement de photons . . . . .	53
3.1.2	Protocole utilisé pour générer des photons uniques . . . . .	55
3.1.3	Fonction d'auto-corrélation du second ordre . . . . .	56
3.1.4	Résultats expérimentaux . . . . .	62
3.1.4.1	Auto-corrélation sous excitation pulsée . . . . .	62
3.1.4.2	Auto-corrélation sous excitation continue . . . . .	65
3.1.4.3	Auto-corrélation du signal associé au biexciton . . . . .	68
3.2	Cascade radiative de photons . . . . .	70
3.2.1	Expérience de corrélation entre raies X et XX sous excitation pulsée	71
3.2.2	Expérience de corrélation entre raies X et XX sous excitation continue	74
3.2.2.1	Dépendance en puissance . . . . .	76
3.2.2.2	Description par un modèle à trois niveaux . . . . .	78
3.3	Contribution à l'étude de raies nettement moins identifiables . . . . .	82
3.4	Perspectives pour l'émission de photons intriqués . . . . .	85
3.5	Conclusion . . . . .	88
<b>4</b>	<b>Contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques uniques dans les micropiliers</b>	<b>89</b>
4.1	Rappels d'électrodynamique quantique en cavité . . . . .	90
4.1.1	Couplage fort . . . . .	90
4.1.2	Couplage faible . . . . .	91
4.2	Effet Purcell et collection de l'émission spontanée . . . . .	92
4.3	Présentation des micropiliers . . . . .	93

4.4	Mise en évidence expérimentale de l'exaltation de l'émission spontanée . . .	98
4.4.1	Mesure directe des temps de vie . . . . .	99
4.4.2	Etude de la saturation des boîtes quantiques . . . . .	102
4.4.3	Autres démonstrations expérimentales . . . . .	106
4.5	Effet Purcell et couplage quasi-monomode de l'émission spontanée . . . . .	107
4.6	Conclusion . . . . .	108
<b>5</b>	<b>Optimisation et caractérisation d'une source de photons uniques mono-</b>	
	<b>mode</b>	<b>111</b>
5.1	Optimisation des paramètres du micropilier pour l'application source à un photon . . . . .	112
5.1.1	Pertes intrinsèques et extrinsèques de la cavité . . . . .	112
5.1.2	Définition d'un taux de collection utile des photons . . . . .	114
5.1.3	Nouvelle approche pour accroître la collection des photons . . . . .	116
5.2	Caractérisation d'une source solide monomode de photons à boîtes quantiques	118
5.2.1	Auto-corrélation de photons . . . . .	119
5.2.2	Estimation de $\beta_u$ . . . . .	120
5.2.3	Détermination expérimentale de $\beta_u$ . . . . .	122
5.3	Comparaison avec les lasers atténués . . . . .	123
5.4	Comparaison quantitative des différents émetteurs de photons uniques . . .	125
5.5	Evolution de $g^{(2)}(0)$ avec la température . . . . .	126
5.6	Conclusion . . . . .	129
<b>6</b>	<b>Conclusion et Perspectives</b>	<b>131</b>
6.1	Bilan . . . . .	131
6.2	Amélioration de la source à photons uniques . . . . .	133
6.2.1	Abaissement de $g^{(2)}(0)$ . . . . .	133
6.2.2	Allègement du dispositif . . . . .	133
6.2.3	Augmentation de la température d'utilisation . . . . .	134
6.3	Injection électrique des porteurs . . . . .	134
6.4	Emission de photons intriqués . . . . .	135
6.5	Photons indiscernables . . . . .	136
<b>A</b>	<b>Expérience de microphotoluminescence</b>	<b>139</b>

<b>B</b>	<b>Expérience de corrélation de photons</b>	<b>143</b>
<b>C</b>	<b>Publications</b>	<b>147</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>149</b>

# Introduction

Les boîtes quantiques constituent un sujet de recherche récent [1, 2]. Depuis leur apparition dans les années 80, leur fonctionnalité potentielle a beaucoup évolué. Initialement, les boîtes quantiques ont été étudiées dans le but d'améliorer les performances des composants à puits quantiques existants et plus particulièrement des lasers [3]. La présence de niveaux discrets bien séparés en énergie à l'intérieur des boîtes quantiques laissaient espérer des courants de seuil très faibles et très peu sensibles à la température.

Jusqu'au début des années 90, les boîtes quantiques étaient majoritairement fabriquées par gravure et lithographie. L'apparition de la méthode de croissance auto-organisée en 1984 [4] a permis de simplifier considérablement le processus de fabrication et d'améliorer la qualité des boîtes quantiques : meilleur rendement radiatif, densités plus élevées, tailles plus homogènes [5, 6, 7, 8, 9]. Cette nouvelle technique a rendu possible la fabrication de lasers à boîtes quantiques présentant des performances comparables à celles des lasers à puits quantiques [10]. Ce succès a également accru l'intérêt pour les études consacrées aux boîtes quantiques individuelles, afin de mieux connaître les possibilités ultimes du composant. Les premiers résultats expérimentaux ont montré que la largeur homogène d'une boîte quantique à 300 K était très élevée (de l'ordre de 10 – 15 meV) [11, 12], ce qui limite leur intérêt en vue d'applications pour les lasers. En effet la courbe de gain est beaucoup moins piquée que dans le cas des puits quantiques, ce qui impose d'appliquer plusieurs plans de boîtes quantiques pour obtenir suffisamment de gain et donc augmente le courant de seuil à température ambiante. En outre la largeur inhomogène de l'émission d'un ensemble de boîtes quantiques, due à leur dispersion en taille, contribue également à l'augmentation du courant de seuil. A cause de ces limitations, tant intrinsèques qu'extrinsèques, les lasers à boîtes quantiques n'ont pas permis à ce jour d'améliorer de façon remarquable les performances des lasers à semi-conducteurs [10]. Il existe cependant quelques niches technologiques pour ces composants. Sans souci d'ex-

haustivité, rappelons que les boîtes quantiques d'InAs permettent d'étendre à  $1.3 \mu\text{m}$  la plage spectrale couverte par les lasers à base de GaAs [13, 14, 15]. La localisation des porteurs dans les boîtes quantiques permet par ailleurs de réaliser des sources lumineuses efficaces à partir d'un matériau disloqué, tel que GaAs sur Si ou les semi-conducteurs III-V Nitrures [7, 16, 17].

Parallèlement à ces développements, avec l'observation des premiers effets du confinement tridimensionnel tels que la séparation nette des niveaux d'énergie [18, 19], l'émission quasi-monochromatique à basse température [5] et des effets coulombiens marqués [20], s'est rapidement imposée l'idée d'utiliser une boîte quantique comme un atome artificiel et de réaliser des expériences d'optique quantique à l'état solide [8, 21, 22]. De nombreux effets démontrés sur les atomes dans les années 70-80 [23, 24, 25, 26, 27] allaient pouvoir être étudiés en milieu solide, avec comme objectif de nouvelles applications dans le domaine de l'optoélectronique. Des fonctionnalités nouvelles, exploitant pleinement le potentiel des boîtes quantiques, se faisaient jour.

Parmi les projets, figuraient entre autres l'observation d'effets de cavité grâce à ces atomes artificiels et la génération d'états quantiques de la lumière [28, 29, 30, 31]. Des expériences récentes ont démontré des effets de cavité, dans le régime de couplage faible, sur des ensembles de boîtes quantiques [21, 32, 33]. Actuellement plusieurs groupes cherchent à mettre en évidence le couplage fort entre une boîte quantique unique et une microcavité [34]. La génération possible d'états quantiques de la lumière s'est en particulier traduit par le projet passionnant de réaliser une source à un photon [22, 29, 30, 31]. Une telle source serait capable d'émettre à la demande des impulsions contenant un et un seul photon. Les applications dans le domaine des télécommunications sécurisées sont considérables, car certains protocoles de cryptographie quantique garantissent la sécurité de l'information, à condition de mettre en œuvre une source de photons uniques [35, 36, 37, 38, 39].

Ce travail de thèse illustre ces développements les plus récents sur les boîtes quantiques uniques. Notre objectif est de mettre clairement en évidence la génération d'états quantiques de la lumière par une boîte quantique unique. Au delà de cette démonstration, le projet de ce travail de thèse est la réalisation d'une source à un photon monomode. L'originalité de notre approche consiste à placer une boîte quantique unique dans une microcavité de type micropilier. Ceci nous permet de nous intéresser au problème de l'efficacité de collection des photons et à leur préparation dans un mode spatial et de polarisation unique.

Nous avons donc mené des caractérisations optiques de microphotoluminescence sur des boîtes quantiques uniques en cavité et hors cavité, sous excitation pulsée et continue ainsi que résolues en temps. Nous avons également réalisé des expériences de corrélation de photons sur ces mêmes boîtes quantiques dans le double but d'identifier les raies d'émission d'une boîte quantique et de démontrer clairement la nature quantique de la lumière émise par cet émetteur. Les structures ont été entièrement fabriquées au LPN, en combinant la croissance de boîtes quantiques et de microcavités par épitaxie par jet moléculaire et la microfabrication des structures tridimensionnelles par lithographie électronique et gravure ionique réactive.

Le plan de ce mémoire est alors le suivant :

Le chapitre 1 décrit les différentes applications que pourraient avoir une source à un photon. Nous rappelons brièvement le protocole de cryptographie quantique qui permet de transmettre des clés de manière intrinsèquement sûre à condition de disposer d'une source de photons uniques. Nous discutons quantitativement l'apport des sources à photons uniques par rapport aux lasers atténués actuellement utilisés pour valider les protocoles de cryptographie quantique. Nous exposons ensuite le principe de notre source à un photon basée sur l'implantation d'une boîte quantique unique dans une microcavité. Enfin nous dressons un état de l'art actuel des sources à un photon actuellement existantes, sans nous limiter au domaine des semi-conducteurs. Les avantages et inconvénients des différents émetteurs sont qualitativement discutés.

Le chapitre 2 introduit les propriétés d'émission d'une boîte quantique unique hors cavité. Nous rappelons tout d'abord quelques propriétés générales des boîtes quantiques. La microphotoluminescence de ces émetteurs est ensuite étudiée sous excitation pulsée puis continue. Ces expériences complémentaires sont renforcées par des études de microphotoluminescence résolue en temps. Les résultats expérimentaux sont comparés à des modèles théoriques et permettent de bien rendre compte de la dynamique des recombinaisons radiatives à l'intérieur d'une boîte quantique. Ces études conduisent à une première identification des raies d'émission d'une boîte quantique unique et à une mesure des temps de vie associés à ces différents états de charge.

Le chapitre 3 met en évidence la génération d'états quantiques de la lumière par une boîte quantique unique. Nous exposons d'abord le protocole utilisé pour émettre des trains de photons uniques à partir d'une boîte quantique. Nous présentons alors des expériences d'auto-corrélation de photons de type Hanbury Brown et Twiss sur nos émetteurs. Ces

expériences, réalisées sous excitation pulsée et continue, prouvent que notre émetteur s'identifie à un oscillateur anharmonique à deux niveaux. A l'aide du même montage expérimental, des expériences de corrélation entre les différentes raies d'émission d'une même boîte quantique conduisent à une attribution certaine de ces raies ainsi qu'à la démonstration de l'émission de paires de photons corrélés dans le temps. Ces résultats constituent les premières observations faites à l'état solide d'effets démontrés sur les atomes dans les années 70.

Le chapitre 4 présente des effets d'électrodynamique quantique en cavité observés sur des boîtes quantiques uniques. Nous commençons par rappeler le principe de l'effet Purcell, qui consiste à exalter l'émission spontanée d'un émetteur placé en résonance avec le mode d'une microcavité, et explicitons son emploi pour la réalisation d'une source de photons monomode avec une bonne efficacité de collection. Nous introduisons ensuite les micropiliers ainsi que leurs propriétés optiques. Partant, des effets de cavité sur une boîte quantique unique en micropilier sont mis en évidence par des expériences de microphotoluminescence, en continu et résolue en temps. Enfin nous démontrons expérimentalement le contrôle de l'état de polarisation et l'émission de photons dans un mode unique dans des micropiliers de section elliptique.

Le chapitre 5 étudie plus spécifiquement le rendement et les limites de notre source à un photon. Nous discutons, à partir des mesures des qualités optiques des microstructures, des caractéristiques optimales que doit posséder un micropilier en l'état actuel de la technologie GaAs pour maximiser l'efficacité de la source de photons uniques. Nous montrons qu'une efficacité de l'ordre de 70% peut probablement être atteinte. Une étude expérimentale pour une boîte quantique dans un micropilier nous a permis d'observer une efficacité de collection supérieure à 40%. Des expériences d'auto-corrélation de photons pour une boîte quantique unique en cavité nous autorisent à affirmer que cette source à un photon est d'ores et déjà meilleure que les lasers atténués utilisés en cryptographie quantique. Enfin des expériences d'auto-corrélation en fonction de la température montrent que l'usage de cette source à un photon devrait pouvoir s'étendre à 77 K.

Nous concluons ce manuscrit en discutant l'avenir des sources à un photon basées sur les boîtes quantiques et en donnant quelques pistes d'amélioration. Nous discutons également l'émission de photons indiscernables. Ces propriétés d'indiscernabilité sont indispensables pour l'émission de paires de photons intriqués et pour la réalisation de portes logiques quantiques basées sur les sources de photons uniques.

# Chapitre 1

## Sources à photons uniques

L'émission de photons uniques a d'abord été observée sur des atomes [23]. Ces expériences mettaient en avant la nature quantique de l'émetteur et n'avaient d'autre but que l'observation d'effets de physique fondamentale. C'est véritablement dans les années 90 que l'idée de réaliser une source de photons uniques en vue d'applications technologiques est apparue. La validation des protocoles de cryptographie quantique [40, 41] pour des applications dans le domaine des communications sécurisées a donné une impulsion à la réalisation de sources à un photon. A l'heure actuelle, c'est un sujet qui motive de nombreuses équipes dans le monde avec une grande variété de solutions proposées : molécules [42, 43, 44], centres colorés de diamant [45, 46], boîtes quantiques [30, 31, 47],...

Dans ce chapitre nous proposons une présentation des sources à un photon, à commencer par leur définition et leurs applications. Parmi ces dernières, nous focaliserons notre attention sur le protocole de cryptographie quantique, qui nécessite un tel émetteur. Nous expliciterons alors les performances requises pour cette application avant de donner un aperçu de l'état de l'art actuel des différents émetteurs de photons uniques existants. Citons une bonne introduction de J. G. Rarity *et al.* aux sources à photons uniques et à leurs applications [48].

### 1.1 Définition de la source à photons uniques

On désigne par source à un photon une source de lumière capable d'émettre à la demande des impulsions contenant un et un seul photon. Pour des raisons pratiques, un système à l'état solide est souhaitable. La longueur d'onde d'émission doit se situer dans une plage où les appareils de détection et les fibres optiques conduisent à des pertes mini-



males. Ces contraintes imposent une utilisation aux fréquences optiques. Rappelons que les fréquences télécom correspondant à des pertes minimales sont de  $1.3 \mu\text{m}$  et de  $1.55 \mu\text{m}$ . Un tel émetteur aurait des applications majeures, dans le domaine des communications sécurisées notamment. Nous explicitons dans la suite ces applications, ce qui nous amènera à préciser les performances souhaitables pour les sources à photons uniques.

## 1.2 Principe de la cryptographie quantique

La principale motivation pour le développement d'une source à photons uniques est leur application potentielle à la distribution de clés quantiques. Plusieurs protocoles de cryptographie quantique existent (voir à ce sujet [35, 36, 37, 38, 39]), utilisant soit des sources de photons uniques ou des sources de paires de photons intriqués. Le codage peut se faire sur la polarisation, la phase ou même la fréquence du photon. Nous ne présenterons que le protocole de cryptographie le plus simple (BB84), défini par Bennett et Brassard [35], qui utilise le codage en polarisation de photons uniques. Ce protocole repose sur le fait qu'il est impossible de déterminer l'état de polarisation d'un photon en réalisant une seule mesure, si on ne connaît pas la base dans laquelle ce photon a été préparé.

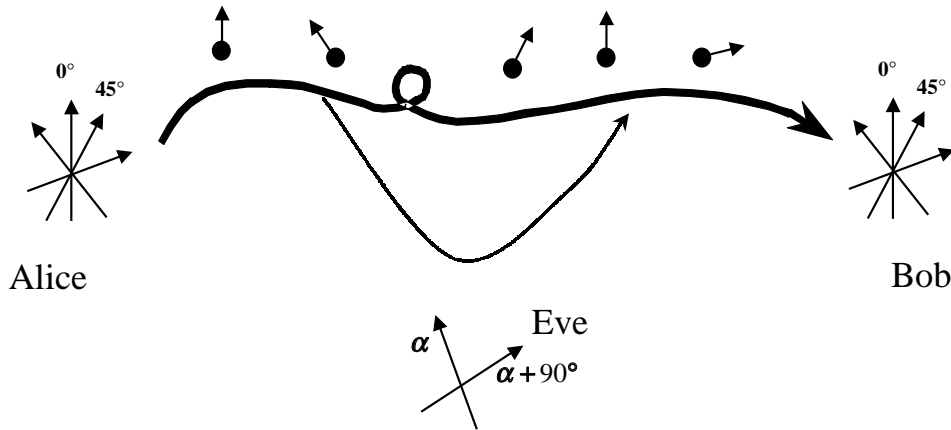


FIG. 1.1 – Schéma de principe de la distribution de clés quantiques. Alice émet aléatoirement des photons codés en polarisation dans une base verticale ou à  $45^\circ$ . Bob mesure leur polarisation avec une de ces deux bases choisie de façon aléatoire. Si Eve espionne la ligne en effectuant des mesures et en renvoyant le résultat à Bob, elle introduit en moyenne 25% d'erreurs dans les résultats de Bob.

Les théories de l'information mettent en jeu des personnages charmants du nom d'Alice l'émetteur du message, Bob le récepteur et Eve l'espion. Alice cherche à transmettre une clef de codage à Bob avec une sécurité absolue. Si Eve essaie d'espionner la ligne, elle

doit être repérée et le message interrompu (voir schéma 1.1).

Alice dispose d'une source de photons uniques dont elle connaît la polarisation. Les photons sont ensuite émis aléatoirement dans une base de polarisation verticale ou une base dont les axes sont inclinés à  $45^\circ$ . Alice envoie donc à Bob de manière aléatoire les états de polarisation suivants :  $\rightarrow$ ,  $\uparrow$ ,  $\nearrow$ ,  $\nwarrow$ . Bob mesure la polarisation de ces photons en choisissant au préalable l'une de ces deux mêmes bases de manière aléatoire et indépendante d'Alice. Chacun de leur côté Alice et Bob enregistrent la base dans laquelle a été effectuée chaque mesure et le résultat de cette mesure.

Ensuite, sur une ligne publique, (téléphone, internet,...) Alice compare avec Bob les bases employées pour l'émission et la détection des photons. Bob et Alice ne conservent alors que les résultats des mesures qui ont été effectuées dans la même base. Statistiquement, ils ne conservent que la moitié des résultats. Pour s'assurer qu'aucun espion n'écoute le canal de transmission, Alice et Bob sacrifient une fraction des résultats restants et les comparent, toujours sur une ligne publique. Dans l'hypothèse où il n'y a pas d'espion les résultats des mesures d'Alice et de Bob sont bien entendu identiques (à un faible nombre d'erreurs près introduites par le système expérimental : coups d'obscurité des détecteurs, alignement imparfait des bases, rotation de la polarisation dans la fibre, ...).

Maintenant, supposons qu'Eve arrive à écouter la ligne en effectuant également des mesures dans ces deux bases<sup>1</sup> de façon aléatoire et indépendante d'Alice et Bob. Pour chaque mesure effectuée, Eve envoie aussitôt à Bob un photon avec un état de polarisation correspondant à sa mesure. Eve a une probabilité  $1/2$  de mesurer la polarisation du photon dans la même base qu'Alice. Dans ce cas Eve mesure la même polarisation qu'Alice et l'envoie à Bob. Eve passe dans ce cas inaperçue aux yeux d'Alice et Bob. Par contre, Eve a une probabilité  $1/2$  d'utiliser la base autre que celle utilisée par Alice. Eve projette le vecteur de polarisation sur sa base. Quand à son tour elle envoie ce vecteur mesuré à Bob, celui-ci projette ce vecteur sur sa base, qui est la même qu'Alice. Bob n'a donc qu'une probabilité  $1/2$  d'obtenir le même vecteur polarisation qu'Alice (voir schéma 1.2). Au total, la mesure d'Eve modifie en moyenne un quart des polarisations envoyées par Alice. Ainsi, si lors de la comparaison des résultats obtenus, Alice et Bob constatent que plus d'un quart de leurs mesures sont fausses, ils ne peuvent exclure l'éventualité d'avoir été espionnés. Par contre s'il n'y a aucune erreur, la ligne est parfaitement sûre et Bob et Alice peuvent se servir de la série de bits transmis comme clé de codage.

---

<sup>1</sup>ou en effectuant toujours les mesures dans la même base, ce qui conduit à la même conclusion.

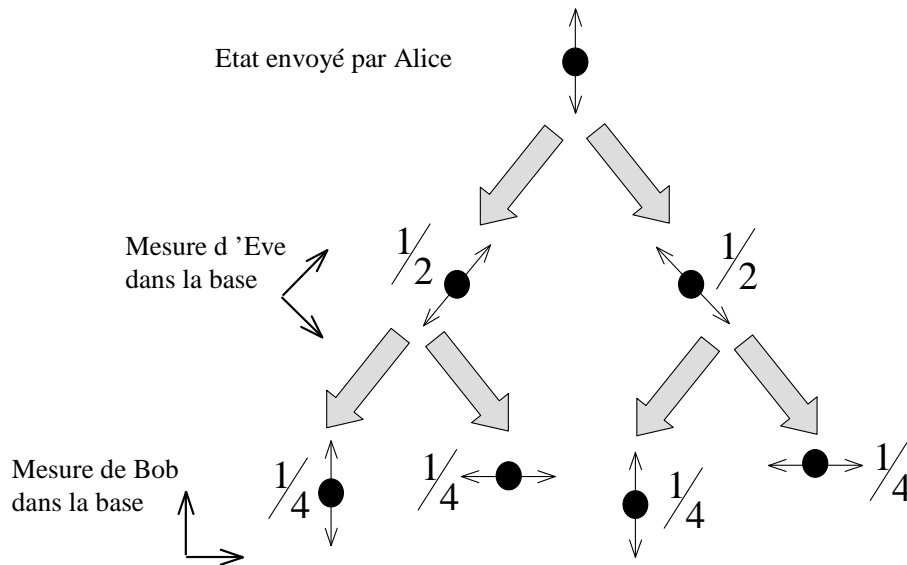


FIG. 1.2 – On se place dans la situation (qui a une probabilité  $1/2$ ) où Eve utilise une base différente d’Alice et Bob. Alice émet un état de polarisation  $\updownarrow$  dans une base verticale (un raisonnement symétrique conduit au même résultat pour les autres états de polarisation). Eve mesure dans sa base à  $45^\circ$  les états  $\nearrow$  et  $\searrow$  avec une probabilité  $1/2$ . Chacun de ces états va conduire pour Bob à des états mesurés  $\leftrightarrow$  et  $\updownarrow$  avec une probabilité  $1/2$ . Au total, la présence d’Eve modifie  $1/4$  des résultats mesurés par Bob.

En pratique, une partie des bits transmis voient leur polarisation être accidentellement modifiée (biréfringences locales, erreurs de détection, ...). Si la proportion des bits erronés reste inférieure à  $\sim 1/6$  (valeur maximale permettant d’utiliser un code de correction d’erreur [49]), Alice et Bob ont la possibilité d’utiliser un code de correction d’erreur pour construire une clé, plus petite, mais sûre à partir de la série de bits transmise.

Dans ce protocole, l’utilisation de photons uniques est le garant de la sécurité inconditionnelle de la clé de codage. Si, au contraire, la source émet plus d’un photon, aucune loi n’interdit à Eve d’extraire ces photons supplémentaires puis de déterminer leur polarisation sans être détectée par Alice et Bob.

A l’heure actuelle, les protocoles de cryptographie quantique ont été validés en utilisant comme source des diodes laser fortement atténuées [40, 41]. Bien que les impulsions cohérentes de faible intensité délivrées par ces sources ne soient que des approximations très grossières d’impulsions à un photon, le protocole de transmission peut cependant être inconditionnellement sûr dans certains cas. Pour mieux comprendre l’intérêt des sources à un photon dans ce contexte, il est donc essentiel d’analyser les limites liées à l’emploi de diodes laser atténuées, puis d’estimer les gains apportés par les sources de photons uniques

(parfaites ou réalistes) en termes de performance de la ligne de transmission sécurisée.

### 1.3 Intérêt des sources de photons uniques par rapport aux lasers atténués

Les lasers atténués, actuellement utilisés pour valider les expériences de cryptographie quantique délivrent des impulsions cohérentes. Le nombre  $n$  de photons fluctue d'une impulsion à l'autre et suit une loi statistique de Poisson. Quelque soit l'intensité moyenne de cette source, on peut trouver des impulsions contenant plusieurs photons, dont l'existence offre à un espion éventuel plusieurs stratégies d'attaque [50]. Dans le cas général où la ligne de transmission présente des pertes, il devient (dans le principe) très facile à un espion d'extraire de l'information sans introduire d'erreurs. Il peut en particulier :

- éliminer les impulsions à un photon, qu'il ne peut étudier sans introduire d'erreur
- étudier les impulsions à plusieurs photons (et trouver leur état grâce à la combinaison de plusieurs mesures quantiques), puis réexpédier vers le destinataire un photon dans le même état de polarisation
- remplacer la ligne à pertes par un canal sans pertes (par canal sans pertes on entend simplement la situation suivante : Eve coupe la ligne de transmission juste en sortie d'Alice et mesure l'état de polarisation du photon. Elle transmet le résultat de sa mesure sur une ligne publique qui va déclencher l'émission d'un photon de la bonne polarisation juste avant le système de détection de Bob.) de façon à ce que le destinataire reçoive le même flux de photons.

Cette stratégie de discrimination sur le nombre de photons (ou “photon number splitting (PNS) attack”) [50] permet potentiellement à l'espion d'avoir accès à toute l'information transmise si le taux d'impulsions multi-photoniques de la source est supérieur au taux de transmission de la ligne à pertes. Pour se protéger contre ce type d'attaques, il est donc nécessaire d'atténuer fortement la source cohérente pour réduire la proportion d'impulsions multi-photoniques. Si  $\langle n \rangle \ll 1$ , les probabilités d'émettre un photon ou plusieurs photons sont respectivement voisines de  $\langle n \rangle$  et  $\langle n \rangle^2/2$ . Notant  $t$  le coefficient de transmission du canal, la ligne n'est sûre vis à vis d'une attaque PNS que si la probabilité conditionnelle d'émettre plusieurs photons sachant qu'on en émet au moins un est inférieure à  $t$  :

$$\frac{\langle n \rangle}{2} \leq t \tag{1.1}$$

Il n'est cependant pas possible de travailler avec une source arbitrairement peu intense. En effet, le taux d'erreur induit par le bruit d'obscurité des détecteurs doit rester suffisamment faible ( $< 1/6$ ) [49] pour permettre la correction des erreurs. Notant  $d$  la probabilité qu'un coup soit lié au bruit d'obscurité, on obtient (en prenant en compte que deux détecteurs constituent le système d'analyse du destinataire, et qu'un coup de bruit génère une erreur une fois sur deux) :

$$\langle n \rangle t \geq 6d \quad (1.2)$$

Comme l'illustre la figure 1.3 a), il découle de ces deux contraintes l'existence d'une portée maximale (ou d'une transmission minimale  $t_{min}$ ) pour un système de distribution de clefs quantiques exploitant des lasers atténués, atteinte lorsque  $\langle n \rangle$  est choisie de façon optimale :

$$t_{min} = \sqrt{3d} \quad \langle n \rangle_{opt} = \sqrt{12d} \quad (1.3)$$

Prenons à titre d'exemple quelques valeurs numériques, correspondant à la démonstration récente d'un système de cryptographie quantique sur fibre optique à  $1.3 \mu\text{m}$  [39]. La transmission globale est donnée par :

$$t = \eta 10^{-(\alpha L + c)/10} \quad (1.4)$$

où  $\eta$  (0.11),  $\alpha$  (0.38 dB/km),  $c$  (5 dB) représentent respectivement l'efficacité des détecteurs, les pertes linéiques de la fibre optique à  $1.3 \mu\text{m}$  et les autres pertes optiques, indépendantes de la longueur de liaison  $L$ . Par ailleurs  $d = 5 \times 10^{-6}$ . Avec ce jeu de paramètres, on trouve que la portée maximale d'une liaison sûre est de 25 km ; pour atteindre cette portée, il faut cependant travailler avec une source très fortement atténuée ( $\langle n \rangle_{opt} \sim 8 \times 10^{-3}$ ), et donc un débit transmis très faible ( $t \langle n \rangle = 6d \sim 3 \times 10^{-5}$  bits/impulsion). A  $1 \mu\text{m}$ , longueur d'onde typique d'émission des boîtes quantiques dans ce travail de thèse, les pertes linéiques  $\alpha$  de la fibre optique sont de  $\alpha \sim 0.8$  dB/km [51, 52]. La portée maximale d'une liaison sûre devient alors égale à 12 km.

Supposons à présent qu'on utilise une source de photons uniques idéale ; dans ce cas, seule la condition 1.2 s'applique, et  $t_{min} = 6d$ . Cette source présente deux atouts majeurs :

- la portée maximale de la liaison sécurisée est nettement augmentée (38 km pour le même choix de paramètres à  $1 \mu\text{m}$  et 81 km à  $1.3 \mu\text{m}$ ).
- le débit est simplement limité par les pertes du système et non par les contraintes sur  $\langle n \rangle$ . Pour une portée de 12 km par exemple, le débit sera de l'ordre de

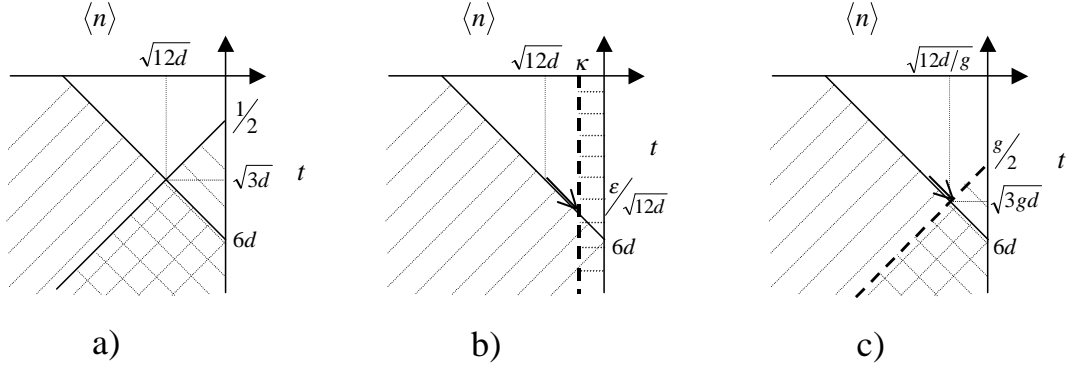


FIG. 1.3 – Le taux de transmission  $t$  de l'émission est étudié en fonction du nombre moyen  $\langle n \rangle$  de photons par impulsion. Cas a) : la source de lumière est poissonnienne, ce qui limite  $t$  à  $\sqrt{3d}$ . Cas b) : source à photons uniques avec une probabilité nulle d'émettre deux photons par impulsion et émettant en moyenne  $\kappa$  photon par impulsion.  $t$  est alors limité par  $\kappa/\sqrt{12d}$ . Cas c) : source à photons uniques avec une probabilité  $g\langle n \rangle^2/2$  d'émettre deux photons par impulsion avec  $\kappa = 1$ .  $t$  est limité par  $\sqrt{3gd}$ . Une source à photons uniques n'apporte une amélioration significative en termes de débit que si elle combine une forte efficacité et une faible probabilité d'émettre plus d'un photon par impulsion.

$4 \times 10^{-3}$  bit/impulsion, soit 130 fois plus grand que pour une source laser atténuée (à  $1 \mu\text{m}$ ).

Dans la pratique, une source de photons uniques présentera des imperfections, qui peuvent être caractérisées par une efficacité  $\kappa$  non parfaite ( $\kappa = \langle n \rangle < 1$ ) et une probabilité faible mais non nulle d'émettre deux photons ou plus,  $g\langle n \rangle^2/2$ , caractérisée par le facteur d'auto-corrélation du second ordre  $g$  ( $0 < g < 1$ ). En reprenant la façon dont les relations 1.1 et 1.2 ont été dérivées, on peut très facilement les adapter au cas de telles sources :

$$g \frac{\langle n \rangle}{2} \leq t \quad (1.5)$$

$$\langle n \rangle t \geq 6d \quad (1.6)$$

$$\langle n \rangle \leq \kappa \quad (1.7)$$

Les figures 1.3 b) et 1.3 c) illustrent graphiquement l'apport de sources à photons uniques imparfaites par rapport aux lasers atténués dans deux cas particuliers ( $g = 0$ ,  $\kappa < 1$  et  $g > 0$ ,  $\kappa = 1$ ). On notera tout d'abord qu'il n'est possible (conformément à l'intuition) d'améliorer la portée de la liaison sécurisée, ou d'augmenter son débit à portée constante, que si l'efficacité de la source est suffisante ( $\kappa > \sqrt{12d}$ ). Même si cette condition est satisfaite, la prise en compte des imperfections limite les bénéfices attendus de l'emploi de sources à un photon. Lorsque  $g > 0$ , il est à nouveau nécessaire de prendre en compte

le risque d'une attaque PNS; on voit que la portée maximale n'est alors obtenue qu'au prix d'une atténuation de la source! Si on utilise une longueur de fibre correspondant à la portée maximale pour une source laser atténuée, on voit que le facteur d'augmentation du débit de transmission pour cette source imparfaite est majoré par  $\kappa/\sqrt{12d}$  et par  $1/g$ . Une source de photons uniques n'apporte donc une amélioration significative en termes de débit que si elle combine une forte efficacité et une faible probabilité résiduelle d'émettre des photons par paires.

En ce qui concerne la portée d'une liaison à distribution de clés quantiques, il est clair que le choix de la source n'a qu'une importance relativement marginale (augmentation d'un facteur 2 pour la source à photons uniques si les pertes d'insertion sont nulles et si le rendement de détection vaut 1), le rôle principal étant joué par les pertes optiques des fibres disponibles à la longueur d'onde de fonctionnement. Le développement de sources à photons uniques compatibles avec les fibres optiques à  $1.3\ \mu\text{m}$  ou  $1.55\ \mu\text{m}$  sera donc à terme un enjeu majeur dans ce contexte.

## 1.4 Application potentielle à l'ordinateur quantique

Les sources à photons uniques pourraient également être utilisées pour réaliser un ordinateur quantique. Cette application potentielle repose sur une proposition récente de E. Knill, R. Laflamme et G. J. Milburn [53]. Ils montrent le résultat surprenant que des calculs quantiques peuvent être effectués à partir uniquement d'éléments d'optique linéaire. Dans leur proposition, ils utilisent simplement des sources à un photon, des lames séparatrices, des modificateurs de phase, des photodétecteurs et le retour des réponses de ces photodétecteurs. C'est en fait dans les photodétecteurs qu'existe une non-linéarité, et leur système de bouclage permet de transférer cette non-linéarité sur le bit quantique. Les bits quantiques, bosoniques dans ce cas, sont définis comme des superpositions linéaires des états de base  $|0\rangle_{l_1} |1\rangle_{l_2}$  et  $|1\rangle_{l_1} |0\rangle_{l_2}$ , où  $|n\rangle_{l_1}$  désigne l'état à  $n$  photons dans le mode optique  $l_1$ .

L'interférence quantique entre deux photons constitue la brique de base de cette proposition. Si un seul photon est envoyé sur une lame séparatrice, il peut ressortir sur une voie de sortie comme sur l'autre. Si par contre deux photons indiscernables (du point de vue de leur polarisation et de leur fréquence) sont envoyés sur une lame séparatrice alors les lois de la mécanique quantique montrent que les deux photons ressortent forcément

ensemble sur une même voie de sortie [54]. La configuration où un photon est émis sur chaque voie de sortie n'existe pas. Ce protocole exige donc également une indiscernabilité des photons émis pour les faire interférer.

Le système optique qu'ils ont conçu permet de réaliser une porte quantique de type  $|a\rangle|b\rangle \longrightarrow (-1)^{ab}|a\rangle|b\rangle$ . A partir de cette porte quantique, il est alors possible de réaliser toutes les opérations de calcul quantique possibles. Ce protocole requiert des pertes de photons faibles, en particulier pour la source à photons uniques. Son efficacité quantique doit être le plus proche possible de 1 et les pertes augmentent de manière polynomiale le temps de calcul.

Cette application potentielle témoigne là encore des efforts à fournir pour obtenir une source à photons uniques avec une efficacité maximale.

## 1.5 Principe d'une source à un photon

Une source solide de photons uniques efficace doit remplir deux fonctions. La première est bien entendu d'émettre les photons un par un. Une des difficultés est donc d'être capable d'isoler à l'état solide un seul émetteur. Parmi les candidats à la source solide de photons uniques, nous pouvons citer les molécules, les nanocristaux, les centres colorés des cristaux ioniques, les ions, les boîtes quantiques. Or tous ces émetteurs ont l'inconvénient de présenter une émission omnidirectionnelle. Tous les photons ne peuvent donc être collectés par un système simple, comme une fibre optique, ce qui dégrade fortement l'efficacité quantique. De plus les photons sont émis dans des modes électromagnétiques distincts, ce qui conduit à des vitesses et temps de propagation différents dans une fibre optique.

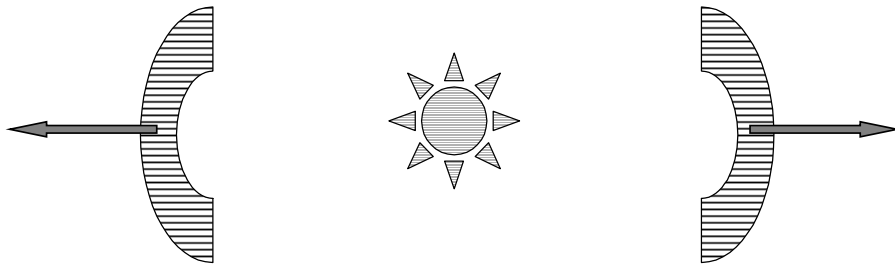


FIG. 1.4 – Schéma de principe d'une source à photons uniques : un émetteur unique placé dans une microcavité tridimensionnelle voit son émission redirigée dans les modes électromagnétiques de la cavité.



Ainsi, la seconde condition consiste à préparer les photons dans un même état quantique et à les collecter efficacement. Ceci nécessite l'emploi de microcavités pour rediriger l'émission dans un seul et même mode. En effet, le couplage entre le dipôle de l'émetteur et le champ électromagnétique de la microcavité provoque un échappement des photons par les modes de la cavité (voir schéma 1.4). La difficulté consiste à trouver des microcavités tridimensionnelles aux longueurs d'onde optiques pouvant intégrer l'émetteur. Nous verrons par la suite que cette condition est très contraignante pour la plupart des émetteurs, seules les boîtes quantiques pouvant être facilement intégrées à l'intérieur de telles microstructures.

Notons qu'une proposition de A. Imamoglu et Y. Yamamoto [22] utilise un protocole très différent. Leur proposition consiste à injecter électriquement et de manière contrôlée une seule paire électron-trou à l'intérieur d'une hétérostructure semi-conductrice (en l'occurrence un puits quantique dans une jonction  $p-n$ ). La paire électron-trou se recombine alors à l'intérieur de cette microstructure pour émettre un et un seul photon. Le contrôle de l'injection de la paire de porteurs repose sur le phénomène de blocage de Coulomb. Grâce à cet effet, il est impossible d'injecter plus d'une paire électron-trou. Cette proposition a été en partie démontrée expérimentalement [55]. Cependant, à cause du blocage de Coulomb, ce système ne peut être exploité qu'à très basses températures ( $\sim 50$  mK), en deçà de la température de l'hélium liquide. De plus, le système de pompage, comportant des électrodes nanométriques au voisinage de l'émetteur, semble très difficile à intégrer à l'intérieur d'une microcavité de bonne qualité optique.

Un autre moyen de produire des photons uniques est d'utiliser la fluorescence paramétrique dans un cristal présentant une non-linéarité  $\chi^{(2)}$  [56, 48]. Sous pompage optique, le cristal produit des paires de photons jumeaux. La détection d'un photon de la paire émis dans une direction permet d'être sûr qu'on a un état à un photon émis dans la direction conjuguée. Ce système remarquable a permis de nombreuses expériences sur des états à un photon, en particulier la violation des inégalités de Bell [57]. Un problème majeur pour les applications en cryptographie quantique est le faible rendement de production des photons uniques ( $\sim 1$  kHz). En effet, il est également possible de produire deux paires de photons, et il faut donc limiter la puissance du laser pompe pour rendre improbable les événements à deux paires de photons.

Une source à photons uniques est donc idéalement composée d'un émetteur unique placé dans une microcavité. Dans la partie 3.1.2, nous reviendrons plus précisément sur le

protocole utilisé pour générer des trains de photons uniques à partir d'une boîte quantique, lorsque nous aurons décrit les caractéristiques de cet émetteur. Dans le paragraphe suivant nous allons présenter les différents émetteurs étudiés à ce jour pour réaliser une source à photons uniques et discuterons succinctement leurs avantages et inconvénients.

## 1.6 Emetteurs pour sources à photons uniques

La première mise en évidence expérimentale de l'émission de photons un par un<sup>2</sup> a été réalisée par H. J. Kimble *et al.* sur des atomes de sodium dans un jet atomique [23]. Les travaux de l'équipe de G. Rempe [58] visent au contrôle de l'émission de photons uniques par des atomes dans une cavité haute finesse en variant la forme et l'amplitude de l'impulsion lumineuse excitatrice. Bien entendu, ce dispositif se prête mal à une application technologique. C'est ensuite sur un ion  $Mg^+$  piégé électriquement à l'intérieur d'une cavité et refroidi par pression radiative laser qu'ont été réalisées ces expériences [59]. Si cette fois un émetteur unique est bien isolé, il reste que le système de piégeage de l'ion s'adapte mal à des applications plus courantes.

C'est véritablement avec des expériences sur les molécules piégées dans un cristal solide que l'application en tant que source de photons uniques est devenue un objectif à part entière.

### 1.6.1 Molécules

Une molécule piégée dans un substrat solide peut constituer un émetteur de photons uniques. Parmi les premières expériences dans ce domaine, celles de Th. Basché *et al.* [42] utilisent une molécule de pentacène dans un cristal de *p*-terphenyl. La transition électronique fondamentale est pompée optiquement et les photons détectés proviennent de l'état excité singulet causé par la séparation de Rabi. Dans ces conditions, la molécule s'apparente à un système à trois niveaux.

Les mesures expérimentales réalisées montraient que la probabilité d'émettre deux photons simultanément était faible mais non nulle, principalement à cause de signaux parasites. Cette source n'était également opérable qu'à très basse température (1.5 K). Le temps de vie du niveau excité était relativement long ( $\sim 25$  ns). Enfin, ces molécules se sont révélées instables et inopérantes après quelques minutes (au plus heures) d'éclairement

---

<sup>2</sup>on parle d'émission dégroupée de photons, comme on le verra par la suite.

[60]. Notons également l'existence de longs intervalles de temps ( $\sim \mu\text{s}$ ) sans émission de photons à cause de la présence d'un état triplet intermédiaire [61].

Depuis, des molécules photochimiquement stables et exploitables à température ambiante, à base de teryllène dans une matrice de *p*-terphenyl, ont été récemment utilisées comme émetteurs de photons uniques [43, 44]. Une courte impulsion laser pompe la molécule de son état fondamental à des niveaux vibrationnels excités du premier état électronique excité. Après des relaxations rapides au plus bas niveau du premier état électronique, la molécule émet un et un seul photon ( $\sim 580\text{ nm}$ ).

Le temps de vie du niveau excité est relativement court ( $\sim 3.8\text{ ns}$ ). La probabilité d'émettre deux photons par impulsion n'est toutefois pas rigoureusement nulle, principalement à cause de la difficulté à isoler spatialement une seule molécule. Les autres molécules contribuent au signal même si elles ne sont pas au point focal de l'objectif de collection. Notons aussi que la probabilité d'émettre un photon avant la fin de la préparation du système dans son état excité, et donc deux photons en tout, n'est pas rigoureusement nulle. Enfin, ce système reste en pratique très difficile à implanter dans des microcavités tridimensionnelles.

Citons également les travaux<sup>3</sup> (à 2 K) de C. Brunel *et al.* [62] qui contrôlent l'émission des photons dans le temps en effectuant une modulation périodique de la résonance de la molécule, réalisée en appliquant un champ électrique sinusoïdal. Le balayage est ajusté de façon à ce que l'interaction avec le champ, intégrée sur une période de balayage, s'apparente à une "impulsion  $\pi$ " et prépare la molécule dans son état excité.

### 1.6.2 Centres N-V de nanocristaux de diamant

Plus récemment, les centres N-V de diamant sont apparus comme un nouveau type d'émetteurs de photons uniques [45, 63].

Un défaut, composé d'un azote supplémentaire et d'une lacune, dans un cristal de diamant conduit à des états discrets en dehors du continuum d'états du cristal. Ce centre N-V peut être considéré comme un système à trois niveaux [45, 63]. Une excitation laser non résonante permet d'observer la fluorescence émise par la transition principale. Comme pour un atome, ce système émet des photons un par un. Expérimentalement, il a été vérifié que la probabilité d'émettre deux photons en même temps est pratiquement nulle.

Ce système présente l'avantage de fonctionner à température ambiante (300 K). Il

---

<sup>3</sup>sur des molécules de dibenzanthanthrene (DBATT).

est également relativement facile d'isoler un seul émetteur en fabriquant des nanocristaux de diamant (taille  $\sim 50$  nm). Une excitation pulsée de l'émetteur est également envisageable [64]. Cependant, la raie associée à cette transition est large ( $\sim 120$  nm) et s'effectue autour de 700 nm. De plus le temps de vie du niveau excité est assez long : plus de 20 ns pour des centres N-V dans des nanocristaux [46]. Enfin, ce système est difficilement implémentable à l'intérieur de microcavités tridimensionnelles.

### 1.6.3 Nanocristaux de CdSe/ZnS et boîtes quantiques

Dans le domaine des semi-conducteurs, le développement des nanostructures a apporté son lot de nouveaux émetteurs à l'état solide pour l'application source à photons uniques. Leur étude jouit de l'ensemble des techniques et des procédés de fabrication des semi-conducteurs, ce qui leur donne *a priori* un avantage quand il s'agit de produire en masse.

Un nanocristal de CdSe/ZnS s'apparente à un atome artificiel que l'on peut exciter par pompage optique. Il s'agit d'une boîte quantique fabriquée à haute température en utilisant des méthodes organométalliques. Les nanoparticules formées sont recouvertes d'un ligand organique puis diluées dans l'hexane pour les disperser [65].

Les expériences réalisées montrent une probabilité très faible d'émettre deux photons simultanément [65]. Ces nanocristaux ont l'avantage de pouvoir être facilement isolés et de fonctionner à température ambiante. Ils ont cependant l'inconvénient de "scintiller" : il existe des laps de temps pendant lesquels le nanocristal s'éteint. Le mécanisme et la statistique auxquels obéissent ces périodes d'extinction sont encore mal compris. De plus, le temps de vie de l'état excité est relativement long ( $\sim 32$  ns).

Enfin, les boîtes quantiques, objets de ce travail de thèse, constituent un émetteur de photons uniques. A l'heure actuelle, elles présentent l'inconvénient d'être utilisées à basse température (8 K) et de posséder une émission qui varie de boîte à boîte. Mais elles présentent également des propriétés remarquables. Nous verrons ainsi qu'une boîte quantique unique présente une probabilité quasiment nulle d'émettre deux photons simultanément. Leur temps de vie est court  $\sim 1.3$  ns et peut être encore raccourci par leur intégration dans une cavité. Les boîtes quantiques sont des émetteurs robustes et très stables : après de nombreux cycles ( $\sim 50$ ) de descente et montée en température les boîtes quantiques étudiées présentent toujours les mêmes caractéristiques. C'est aussi, à notre connaissance, le seul émetteur qui puisse être facilement intégré dans une microcavité

tridimensionnelle, comme nous allons le voir dans ce travail de thèse. L'ensemble des techniques utilisées fait appel à la technologie des semi-conducteurs, ce qui leur donne un net avantage pour des applications industrielles futures. Enfin, les boîtes quantiques peuvent être excitées de manière électrique [66], ce qui constitue un atout de taille en vue de futures applications.

En parallèle de ce travail de thèse, plusieurs équipes ont travaillé sur les boîtes quantiques uniques en vue d'applications pour la source à photons uniques. Notre équipe au LPN Bagnex s'est attachée à étudier les boîtes quantiques uniques en micropiliers [47]. L'équipe de A. Imamoglu [30, 67] s'est davantage intéressée à l'étude de ces mêmes objets dans des microcavités en forme de microdisques. Y. Yamamoto *et al.* [31] travaillent également sur des boîtes quantiques en micropiliers. Enfin, l'équipe de G. Björk *et al.* [68] utilise des lentilles géométriques (SIL pour Solid Immersion Lens) pour essayer d'améliorer l'extraction des photons émis par une boîte quantique unique.

Dans la partie 5, nous comparerons de manière plus quantitative ces différents émetteurs de photons uniques à notre source à un photon.

## Chapitre 2

# Boîtes quantiques uniques

Les boîtes quantiques ont été pour la première fois fabriquées et caractérisées au CNET Bagnex en 1985 [4]. Depuis elles sont devenues un sujet d'études extrêmement riche, à la fois d'un point de vue fondamental et dans l'objectif d'applications dans le domaine de l'optoélectronique. Parmi ces applications citons les lasers à boîtes quantiques pouvant émettre à la longueur d'onde de  $1.3 \mu\text{m}$  utilisée en télécommunications [13, 14, 15]. Depuis quelques années, l'intérêt pour cet émetteur pris en tant qu'objet unique s'est accru. Ses propriétés de photoluminescence sont tout à fait cruciales pour notre projet, puisqu'il constitue l'émetteur de notre source à un photon. C'est pourquoi la caractérisation de l'émission d'une boîte quantique unique constitue l'objet de ce chapitre.

Nous rappellerons d'abord la méthode de fabrication des boîtes quantiques et quelques-unes de leurs propriétés, en nous limitant au système InAs/GaAs. La photoluminescence d'une boîte quantique unique sera ensuite étudiée sous excitation continue et pulsée dans le but d'identifier les différentes raies d'émission. Les résultats expérimentaux seront ensuite comparés à un modèle théorique simple. La spectroscopie résolue en temps réalisée sur ce même émetteur nous renseignera sur la dynamique de l'émission des photons. Enfin, les différentes causes de l'élargissement homogène d'une raie seront discutées.

## 2.1 Propriétés générales

### 2.1.1 Croissance des boîtes quantiques

La croissance des boîtes quantiques que nous avons utilisées se fait de manière auto-organisée par épitaxie par jet moléculaire [69]. Des couches d'InAs sont déposées sur

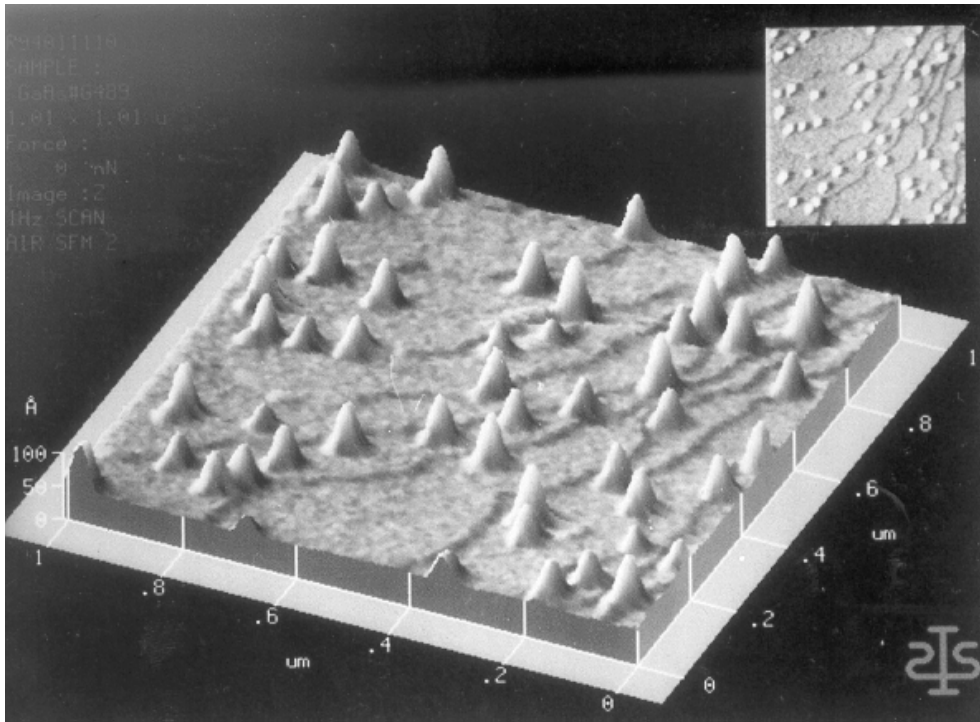


FIG. 2.1 – Profil en microscopie par force atomique d’îlots d’InAs sur GaAs. L’échelle suivant  $z$  est démultipliée par rapport à celle dans le plan  $(xy)$ . Micrographie J.-M. Moison.

un substrat plan de GaAs. Ces deux matériaux ont la même structure cristalline mais possèdent des paramètres de maille différents ( $6.0565 \text{ \AA}$  pour InAs,  $5.6476 \text{ \AA}$  pour GaAs) ; c’est ce qui constitue la clé de cette méthode de croissance. Ainsi les couches d’InAs déposées s’accordent en maille avec le GaAs en emmagasinant une énergie élastique de compression. Au delà de 1.7 monocouches déposées, la contrainte se relaxe et la croissance se fait de manière tridimensionnelle, des îlots de forme pyramidale se forment à la surface de l’échantillon (voir figure 2.1). Il reste toutefois une couche bidimensionnelle d’InAs appelée couche de mouillage. Une fois recouverts de GaAs ces îlots prennent une forme de “lentille aplatie”. Leurs dimensions typiques sont de  $3 \text{ nm}$  de hauteur et de  $20 \text{ nm}$  de diamètre. La densité surfacique typique d’un plan de ces îlots est  $4.10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . La taille de ces objets est variable, avec une fluctuation relative en taille de l’ordre de  $5\%$ .

Ces inclusions d’un matériau semi-conducteur de petite bande interdite (InAs pour les boîtes étudiées dans cette thèse) dans un autre matériau de semi-conducteur de grande bande interdite (GaAs) constituent ainsi un puits de potentiel tridimensionnel pour les paires électron-trou. Ce confinement à des échelles nanométriques conduit à des états électroniques discrets ; c’est pourquoi ces inclusions portent le nom de boîtes quantiques et

qu'elles sont souvent comparées à des atomes artificiels. Les états électroniques de conduction (resp. valence) sont situés à plus basse (resp. plus haute) énergie que le continuum d'états du GaAs et de la couche de mouillage d'InAs. A cause de cette configuration de bande, une boîte quantique est un puits de potentiel à la fois pour les électrons et les trous. Les mesures expérimentales des temps de capture des porteurs par les boîtes quantiques et de leur temps de relaxation vers les niveaux fondamentaux sont très courts ( $\sim 20 - 30$  ps) [70, 71]. La capture est probablement assistée par le champ de contraintes généré par les îlots. Une fois les porteurs relaxés vers leurs niveaux fondamentaux respectifs, ils se recombinent radiativement. Enfin, le rendement quantique  $\eta$  à basse température ( $T < 100$  K) est très proche de l'unité [7].

### 2.1.2 Propriétés de photoluminescence

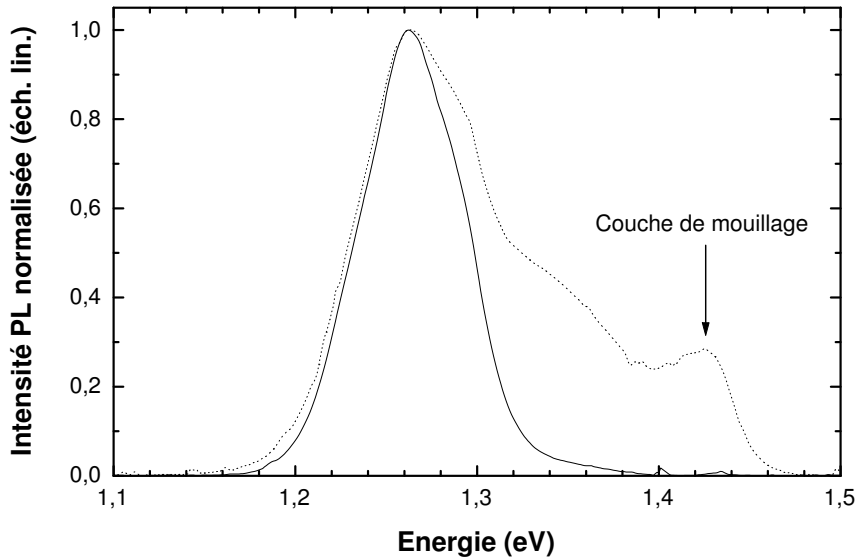


FIG. 2.2 – Photoluminescence à basse température (77 K) d'un ensemble de boîtes quantiques. A faible puissance d'excitation (trait plein), le signal provient uniquement des recombinaisons dans la transition fondamentale des boîtes quantiques. La largeur du spectre (60 meV) est une largeur inhomogène, due à la dispersion en taille de ces émetteurs. A forte excitation (en pointillé), les transitions excitées des boîtes quantiques apparaissent ainsi que celles dans la couche de mouillage.

Le spectre de photoluminescence à basse température (77 K) d'un ensemble de boîtes quantiques présente un élargissement de l'ordre de 60 meV autour de 1.2 – 1.3 eV



(voir figure 2.2). D'une part, ce gap entre l'émission des boîtes quantiques et l'InAs (1.44 eV à 77 K) révèle bien l'existence d'un confinement quantique. D'autre part l'importante largeur observée de l'émission est un élargissement inhomogène et provient de la dispersion en taille des boîtes quantiques. En effet, la position des niveaux électroniques dépend fortement du volume et de la forme de la boîte quantique. C'est ainsi qu'un déplacement spectral de l'émission des boîtes quantiques avec leur taille est observée [72]. A plus forte puissance d'excitation on sature la transition fondamentale, et on voit apparaître à plus haute énergie les états excités des boîtes quantiques ainsi que les états continus de la couche de mouillage.

Pour étudier la structure fine des boîtes quantiques il faut donc être capable d'isoler un seul de ces émetteurs.

## 2.2 Spectroscopie d'une boîte quantique unique

### 2.2.1 Isolation d'une unique boîte quantique

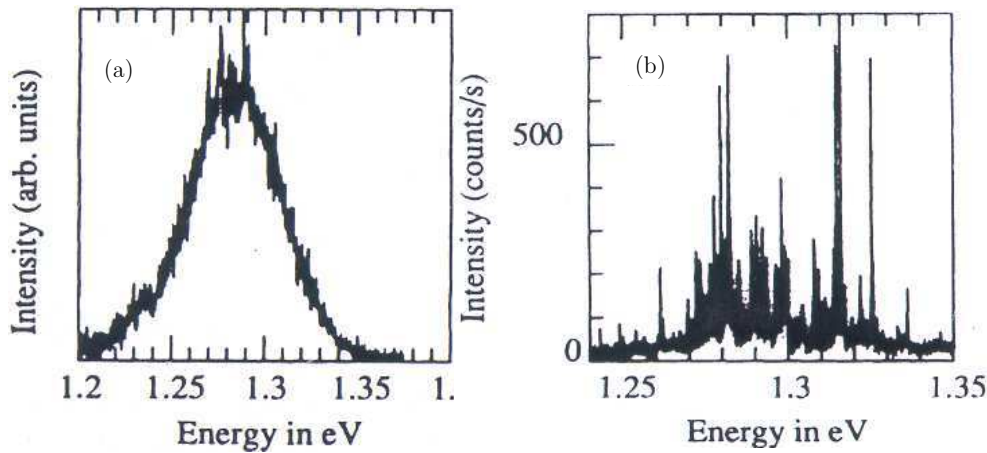


FIG. 2.3 – Photoluminescence à basse température (10 K) de *mesas* de tailles différentes contenant un plan de boîtes quantiques, publiée dans [5]. Fig. (a) : *mesa* de taille 5  $\mu\text{m}$ . Fig. (b) : *mesa* de taille 0.5  $\mu\text{m}$ . La réduction en taille des *mesas* a permis de montrer que l'émission d'un plan de boîtes quantiques est bien due à un ensemble de raies fines associées à des états d'énergie discrets.

La spectroscopie de boîtes quantiques uniques a été initiée au CNET-Bagneux par l'équipe de J.-Y. Marzin [5, 6]. L'idée de Jean-Yves Marzin consistait à réaliser des *mesas* gravés<sup>1</sup>, microstructures parallélépipédiques contenant les îlots quantiques. Ces structures

<sup>1</sup>Notons que des masques métalliques percées de petites fenêtres [73] et des techniques de microscopie optique en champ proche [74] sont aussi utilisées pour isoler des boîtes quantiques uniques.

ont permis d'observer que l'émission de boîtes quantiques est bien un ensemble de raies fines associées à des états d'énergie discrets, comme le montre la figure 2.3. En réduisant la taille des *mesas*, on voit clairement que l'émission est constituée de raies fines. Cependant un tel *mesa*, de taille  $1\ \mu\text{m}$ , comporte encore un trop grand nombre d'émetteurs (typiquement 100). La réalisation de *mesas* d'une taille inférieure, de l'ordre de  $0.1\ \mu\text{m}$ , a ses limitations. Premièrement, la gravure de si petites structures est d'une réelle difficulté technologique. Deuxièmement, pour ces tailles, les états de surface peuvent perturber l'émission des boîtes quantiques car elles favorisent la capture de charges électroniques. Ainsi pour étudier une seule boîte quantique, il faut allier à cette méthode une dilution du champ d'îlots.

Une solution consiste à réaliser des échantillons dits "zone-frontière"<sup>2</sup>. Le dépôt des couches lors de l'épitaxie ne se fait pas de façon totalement homogène sur toute la plaque : il existe un gradient d'épaisseur des couches déposées. On ajuste alors les paramètres de l'épitaxie pour que les monocouches d'InAs déposées en centre de plaque soit supérieures à 1.7 (et conduisent ainsi à une croissance 3D), et inférieures à 1.7 en bordure (croissance 2D). Ainsi il existe une zone de transition (appelée zone-frontière) correspondant à la couche de dépôt critique pour la formation des boîtes quantiques [28, 69, 75]. Dans cette partie la densité d'îlots est extrêmement faible ( $\sim 10\ \mu\text{m}^{-2}$ ). Un *mesa* de 1 à  $3\ \mu\text{m}$  suffit ainsi à isoler une seule boîte quantique.

Dans cet ouvrage de thèse nous avons utilisé des boîtes quantiques à l'intérieur de *mesas* placés sur de l'or. A la fin de l'étape d'épitaxie on dépose  $1000\ \text{Å}$  d'au. L'échantillon est alors collé sur un substrat de Si. Le substrat de GaAs est ensuite retiré par attaque chimique sélective, ainsi que la couche d'arrêt d'AlAs. Ensuite, le processus usuel de lithographie électronique puis d'attaque chimique permet de définir des *mesas* de  $0.2\ \mu\text{m}$  à  $5\ \mu\text{m}$  dans la zone-frontière (pour des précisions sur le processus de fabrication voir [76]).

Cette approche a permis d'obtenir des spectres contenant moins d'émission résiduelle comparativement à des boîtes quantiques dans de simples *mesas*.

Un spectre de microphotoluminescence associée à un *mesa* à basse température (8 K) présente bien un ensemble de raies très fines ( $< 30\ \mu\text{eV}$ ) (voir figure 2.4). Se pose

---

<sup>2</sup>On peut aussi utiliser le décalage spectral entre les boîtes quantiques et les isoler "spectralement". La distribution spectrale d'un ensemble de boîtes quantiques a une allure gaussienne, comme le montre la figure 2.2. En étudiant la queue de la distribution spectrale, le nombre de boîtes quantiques est statistiquement plus faible et l'on peut ainsi isoler spectralement un seul émetteur.

dès lors la question de savoir si ces différentes raies proviennent d'une même boîte quantique, et si oui, comment identifier ces raies. Pour y répondre nous avons, dans ce travail de thèse, utilisé deux procédés ; tout d'abord des études en puissance de la microphotoluminescence et ensuite des expériences de corrélation de photons. L'ensemble des résultats expérimentaux sur les études en puissance a été obtenu grâce à un montage de microphotoluminescence décrit en annexe A.

## 2.2.2 Identification des raies d'émission

Le spectre du *mesa* étudié dans cette partie présente une seule raie d'émission à basse excitation (voir figure 2.4). C'est la preuve que ce *mesa* ne contient qu'une seule boîte quantique. A forte excitation le spectre devient beaucoup plus compliqué. La cause, maintenant bien connue [18, 20, 77, 78], est l'interaction coulombienne entre porteurs de charge piégés qui joue un rôle important, en particulier dès que plusieurs paires électron-trou sont capturées par la boîte quantique [79]. L'étude en fonction de la puissance d'excitation pour identifier ces raies a été réalisée sous régime pulsé et continu. L'étude sous excitation pulsée est plus simple à interpréter, c'est donc par celle-ci que nous commencerons.

### 2.2.2.1 Spectroscopie d'une boîte quantique en fonction de la puissance sous excitation pulsée

La figure 2.4 donne l'évolution de la photoluminescence d'une boîte quantique unique en fonction de la puissance d'excitation, sous excitation pulsée. A faible puissance d'excitation<sup>3</sup> on observe une raie unique notée "X" qui croît linéairement avec la puissance d'excitation. Cette raie peut être associée à la recombinaison d'une seule paire électron-trou (exciton) présente dans le niveau fondamental de la boîte quantique (voir figure 2.5). A plus forte puissance d'excitation, on voit apparaître une seconde raie, notée "XX", à  $\sim 2.5$  meV plus haut en énergie. Cette raie, qui croît de manière quadratique avec la puissance d'excitation, est associée à la transition fondamentale de la boîte quantique mais pour un état de charge de deux paires électron-trou (biexciton). Ces recombinaisons à des énergies différentes sont dues à la très forte interaction coulombienne entre les porteurs, signature de la 0-dimensionnalité du système : la recombinaison de la première paire électron-trou est perturbée par la présence de la seconde. Dans le cas présent, la

---

<sup>3</sup>régime où l'on injecte en moyenne nettement moins qu'une paire électron-trou par temps de vie de la boîte quantique.

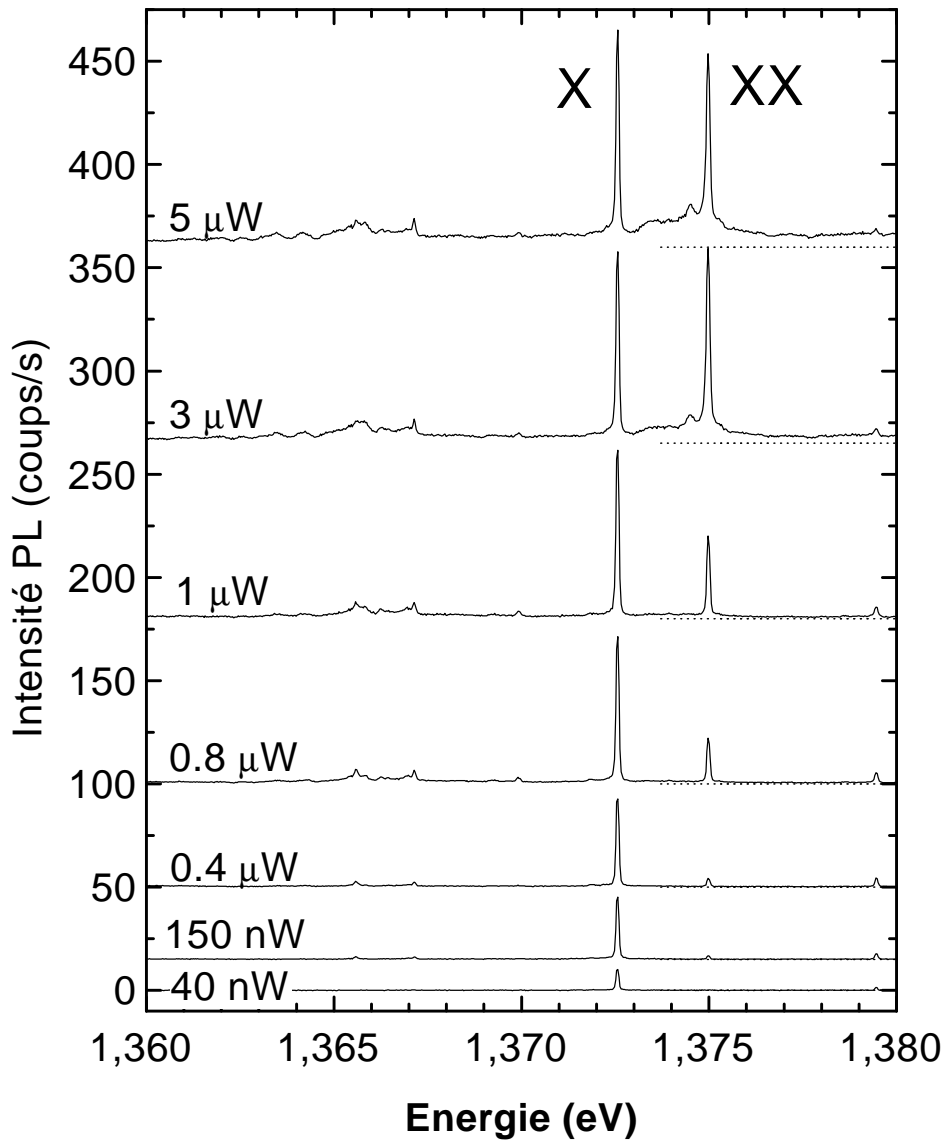


FIG. 2.4 – Evolution de la photoluminescence (PL) de la transition fondamentale d’une boîte quantique unique sous excitation pulsée en fonction de la puissance d’excitation. Les courbes sont décalées suivant les ordonnées, les pointillés indiquant les lignes de base. La transition notée “X” correspond à la transition fondamentale de la boîte quantique contenant une seule paire électron-trou (exciton). La transition “XX” correspond à la transition fondamentale de la boîte quantique contenant deux paires électron-trou. Les raies à basse énergie correspondent à la transition fondamentale pour d’autres états de charge. A forte excitation les raies X et XX saturent au même niveau, ce qui correspond à l’émission d’un et un seul photon pour chaque raie à chaque impulsion laser.

raie associée au biexciton est située à plus haute énergie que celle de l'exciton. D'autres groupes ont montré des configurations inverses, où la raie XX est à plus basse énergie [18, 19]. Ces observations expérimentales sont en accord avec la prédiction de P. Lelong et G. Bastard [80, 81] qui montre que les deux cas sont possibles et sont fonction de la géométrie de la boîte quantique. Pour une puissance d'excitation supérieure, de nombreuses raies croissent à plus basse énergie que l'on associe toujours à la transition fondamentale, légèrement déplacée en énergie par la présence de paires électron-trou supplémentaires dans la boîte quantique (triexciton, ...). L'attribution de ces raies est confortée par l'apparition simultanée à beaucoup plus haute énergie (50 meV) d'un ensemble de raies qui correspondent au premier état excité de la boîte quantique. En effet, à cause du principe de Pauli, seules deux paires électron-trou peuvent occuper l'état fondamental, les paires excédentaires venant remplir le premier état excité. La figure 2.5 indique les différents états possibles de la boîte quantique occupée par une, deux et trois paires électron-trou. Toutes ces configurations expliquent la multitude de raies observées et l'amplitude plus faible des raies 3X comparée à celle des raies X et XX. Notons que nous ne pouvons pas exclure que certaines de ces raies soient associées à des états exciton chargé (un exciton avec un électron ou un trou en plus) ou biexciton chargé, comme le montrent les résultats d'autres équipes [19].

### 2.2.2.2 Analyse de la dépendance en puissance sous excitation pulsée

L'attribution de ces raies à différents états de charge de la boîte quantique est confirmée par leur dépendance en puissance. En effet, à faible excitation, l'intensité de la raie X est proportionnelle à la probabilité d'injecter une seule paire électron-trou dans la boîte quantique par impulsion laser. Cette probabilité croît bien de façon linéaire avec la puissance en régime de basse excitation (voir figure 2.6), si l'on considère une injection poissonnienne des porteurs en fonction de la puissance. A forte excitation, on observe une saturation en intensité de la raie X. On est alors dans un régime où l'on injecte en moyenne plus d'une paire électron-trou par impulsion laser. Les porteurs se recombinent de manière séquentielle et conduisent toujours à l'état où la boîte quantique est occupée par une seule paire électron-trou. On est dans un régime où on a exactement un photon de type X émis après l'impulsion laser, et ce quelque soit la puissance d'excitation<sup>4</sup>.

---

<sup>4</sup>Il est important que les impulsions laser soient suffisamment séparées dans le temps pour qu'entre deux impulsions, toutes les paires aient eu le temps de se recombiner. Ceci est bien le cas dans nos expériences

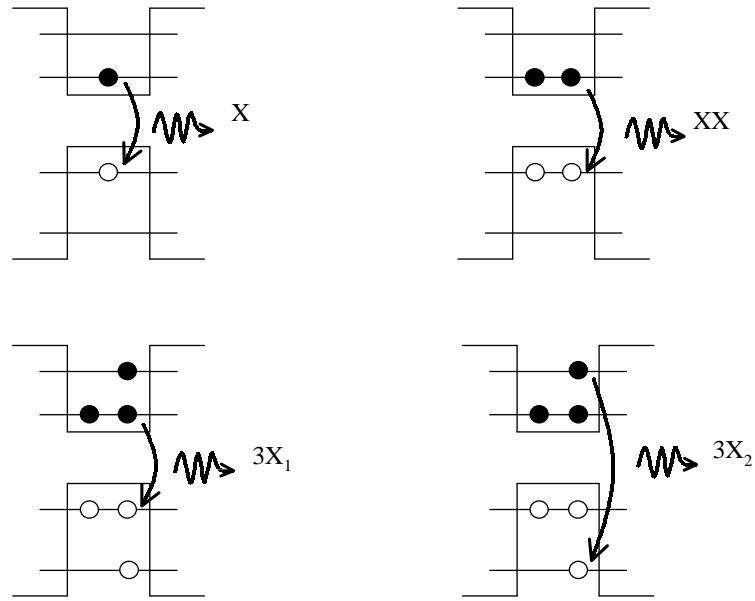


FIG. 2.5 – Schéma des niveaux d'énergie à l'intérieur d'une boîte quantique. ● représente un électron et ○ un trou. Chaque état de charge (exciton (X), biexciton (XX) et triexciton (3X)) de la boîte quantique correspond, à cause de la forte interaction coulombienne entre les porteurs, à l'émission de photons distincts. La recombinaison de la première paire électron-trou d'un état triexciton peut se faire soit du niveau fondamental, soit du niveau excité, ce qui conduit à des photons d'énergie distincte.

A faible excitation, l'intensité de la raie XX a une dépendance quadratique avec la puissance d'excitation, puisque son intensité est proportionnelle à la probabilité d'injecter deux paires électron-trou dans la boîte quantique par impulsion, qui croît comme le carré de la puissance d'excitation. On observe de même une saturation de la raie associée au biexciton à plus forte excitation. On est dans le régime où l'on injecte en moyenne plus de deux paires électron-trou par temps de vie. La puissance de saturation de la raie XX est ainsi supérieure à celle de la raie X. Lorsque plus de deux paires électron-trou sont injectées, la recombinaison séquentielle des porteurs conduit toujours à l'état biexciton ( $n = 2$ ) à l'intérieur de la boîte quantique. Dans ce régime, exactement un photon de type XX est émis par cycle d'excitation laser, comme pour l'exciton. D'ailleurs, on vérifie bien sur la figure 2.6 que les raies X et XX saturent à la même valeur. Dès lors, on voit qu'il est *a priori* possible d'émettre exactement un photon par impulsion laser en sélectionnant

---

puisque la période du laser (12 ns) est bien supérieure au temps de recombinaison radiatif des porteurs ( $\sim 1$  ns).

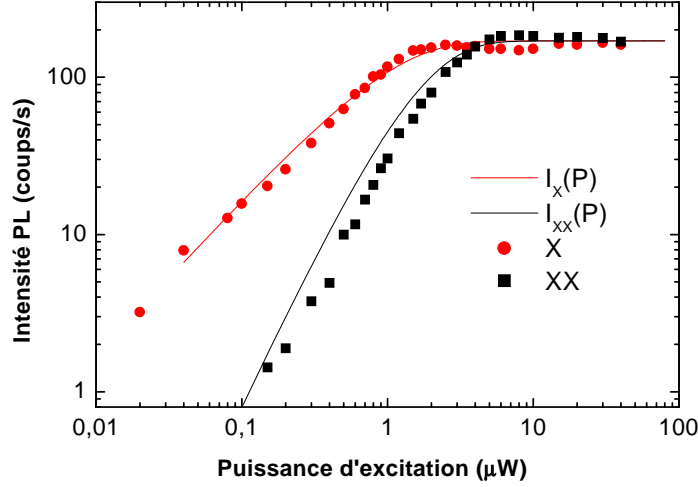


FIG. 2.6 – Evolution des intensités intégrées des raies X et XX en fonction de la puissance d'excitation, sous excitation pulsée. Les courbes en trait plein sont obtenues par les expressions 2.2 et 2.3, issues d'un modèle Poissonnien. A faible excitation la raie X dépend linéairement de la puissance d'excitation alors que la raie XX a une dépendance quadratique. A forte excitation les deux raies saturent au même niveau.

uniquement la raie X (ou la raie XX).

### 2.2.2.3 Modélisation simple de la dépendance en puissance

On peut ainsi bâtir un modèle simple pour décrire quantitativement le comportement en intensité des raies observées en fonction du taux de pompage. Les hypothèses de ce modèle sont les suivantes.

Premièrement, on suppose que la boîte quantique ne capture que des paires de porteurs. Cette hypothèse semble bien vérifiée puisqu'à faible excitation on n'observe qu'une seule raie d'émission. Si des états de charge différents existaient à l'intérieur de la boîte quantique (exciton avec un électron ou un trou en plus), on verrait autant de raies supplémentaires à cause de la sensibilité du processus de recombinaison aux interactions coulombiennes [19, 82].

Deuxièmement, le processus de capture des paires électron-trou est supposé aléatoire et ne dépend pas en particulier du nombre de porteurs déjà présents dans la boîte quantique. Sous ces hypothèses, le nombre de paires électron-trou créées par impulsion laser est directement proportionnel à la puissance d'excitation et suit une statistique poissonnienne. Alors, la probabilité  $P(n)$  d'avoir  $n$  paires électron-trou capturées par la boîte quantique

après une impulsion laser s'écrit donc :

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} = \frac{1}{n!} \left( \frac{P}{P_0} \right)^n e^{-P/P_0} \quad (2.1)$$

où  $\langle n \rangle$  est le nombre moyen de paires électron-trous créées par impulsion, fonction linéaire de la puissance laser incidente  $P$  ( $P_0$  constante). Comme la recombinaison des paires électron-trou se fait de manière séquentielle, l'intensité de la raie X est directement proportionnelle à la probabilité d'injecter au moins une paire électron-trou, c'est à dire  $(1 - P(0))$ . L'intensité de la raie XX est proportionnelle à la probabilité d'injecter au moins deux paires électron-trou et ainsi de suite. Ainsi dans le cas des raies X et XX, leurs intensités s'expriment de la façon suivante :

$$I_X(P) = I_0(1 - P(0)) = I_0 \left( 1 - e^{-\frac{P}{P_0}} \right) \quad (2.2)$$

$$I_{XX}(P) = I_0(1 - P(0) - P(1)) = I_0 \left( 1 - e^{-\frac{P}{P_0}} - e^{-\frac{P}{P_0}} \left( \frac{P}{P_0} \right) \right) \quad (2.3)$$

où  $I_0$  et  $P_0$  sont des constantes.  $I_0$  est l'intensité de saturation des raies<sup>5</sup> et  $P_0$  est la puissance du laser pour laquelle on observe la saturation de l'émission associée à l'état exciton.

La figure 2.6 présente la comparaison des courbes expérimentales au modèle ci-dessus, les paramètres  $I_0$  et  $P_0$  étant bien entendu pris identiques pour la raie X et la raie XX. Ce modèle est en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Cet accord est d'autant plus remarquable que les courbes coïncident sur 4 décades de puissance. Il est à noter que l'intensité de saturation de la raie XX peut différer légèrement de celle de la raie X (ici  $\sim 10\%$ ). Cet effet peut provenir des recombinaisons non radiatives. Si tel est le cas, les mécanismes radiatifs restent prépondérants par rapport aux non radiatifs, dont la contribution est estimée au plus à  $\sim 20\%$ . Notons que les raies ne sont pas polarisées et que cette observation ne peut donc pas venir de la différence de réponse en polarisation du système de détection.

#### 2.2.2.4 Spectroscopie et analyse en puissance sous excitation continue

Les raies observées sous excitation continue ont la même position qu'en régime pulsé, cependant leur dépendance en puissance est radicalement différente à forte excitation. En régime pulsé on observe tous les états de charge, en régime continu ces états de

---

<sup>5</sup>Cette intensité de saturation est identique pour la raie X et la raie XX puisqu'elle correspond à l'émission d'un et un seul photon par cycle de répétition du laser.



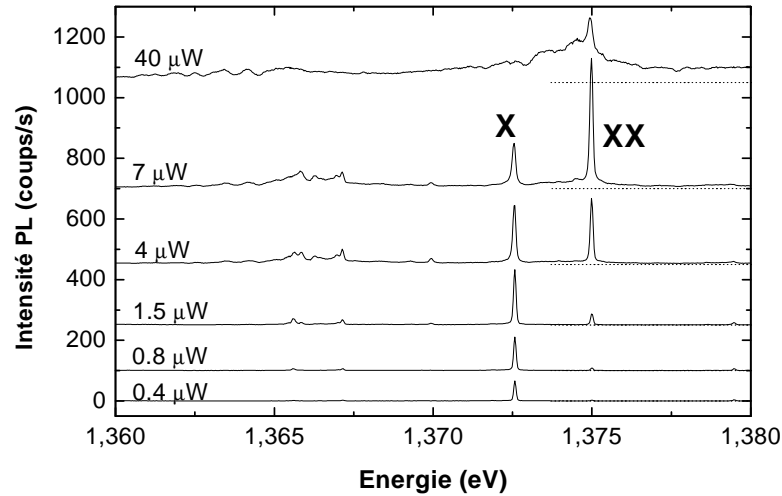


FIG. 2.7 – Evolution de la photoluminescence de la transition fondamentale d’une boîte quantique unique sous excitation continue en fonction de la puissance d’excitation. Les courbes sont décalées suivant les ordonnées, les pointillés indiquant les lignes de base. La transition notée “X” correspond à la transition fondamentale de la boîte quantique contenant une seule paire électron-trou (exciton). La transition “XX” correspond à la transition fondamentale de la boîte quantique contenant deux paires électron-trou. Les raies à basse énergie correspondent à la transition fondamentale pour d’autres états de charge. A forte excitation la raie X, puis la raie XX, disparaissent car l’occupation moyenne de la boîte quantique devient supérieure à une (puis deux) paire électron-trou.

charge sont au contraire “en compétition” les uns avec les autres. La figure 2.7 illustre l’évolution de la photoluminescence sous excitation continue. La raie X croît d’abord de façon linéaire avec la puissance d’excitation (voir figure 2.8). En effet son intensité est proportionnelle à la probabilité d’avoir une paire électron-trou à l’intérieur de la boîte quantique. En continu, cette probabilité dépend linéairement de la puissance à basse excitation, car on injecte nettement moins qu’une paire électron-trou en moyenne par temps de vie de l’exciton. A plus forte excitation l’intensité de la raie X sature et passe par un maximum, c’est le point où l’on injecte en moyenne une paire électron-trou par temps de vie de l’exciton. Ensuite la raie X diminue en intensité lorsque l’on augmente la puissance d’excitation. On est alors dans un régime où l’on injecte en moyenne plus d’une paire électron-trou par temps de vie de l’exciton. Par conséquent, la probabilité d’avoir une seule paire de porteurs à l’intérieur de la boîte diminue quand le taux d’injection augmente. La boîte quantique n’a pas le temps de se vider de ses porteurs car le taux d’injection des porteurs est plus important que leur temps de recombinaison. La raie X

diminue en intensité au détriment de raies associées à des états de charge plus élevés.

La raie XX croît de façon quadratique avec la puissance à faible excitation, car son intensité est proportionnelle à la probabilité de présence de deux paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique. La raie XX passe, comme la raie X, par un maximum d'intensité puis décroît avant de disparaître. En effet la probabilité de présence de deux paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique diminue lorsque l'on injecte en moyenne plus de deux paires de porteurs par temps de vie et finit par devenir négligeable. A très forte excitation les pics de luminescence sont de moins en moins bien définis et tendent à s'élargir, en raison des interactions avec le plasma de porteurs créé dans la couche de mouillage.

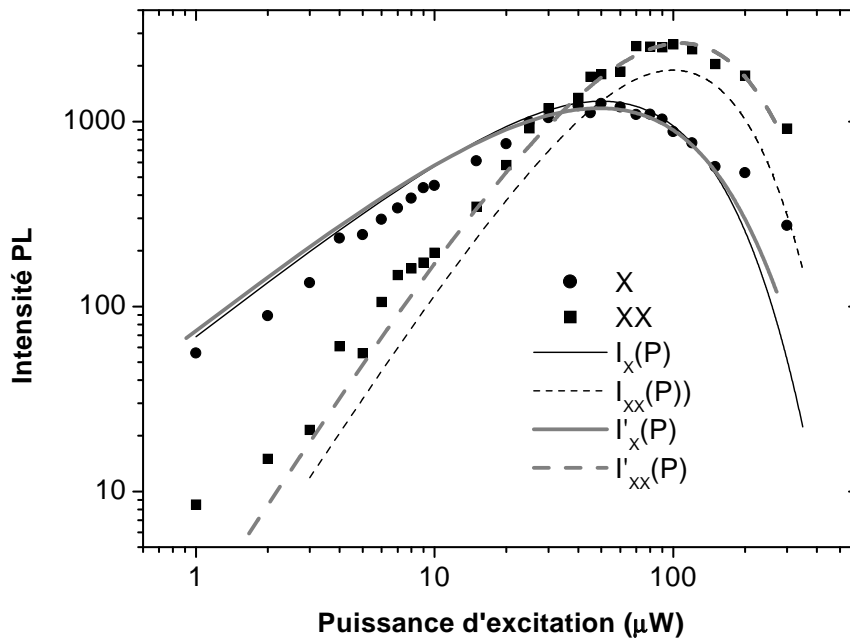


FIG. 2.8 – Evolution des intensités intégrées des raies X et XX en fonction de la puissance d'excitation, sous excitation continue. Les courbes en trait plein sont obtenues par les expressions 2.11. Les courbes en pointillé sont issues du modèle 2.9 pour un temps de vie de l'état exciton 4 fois plus long que celui du biexciton.

### 2.2.2.5 Modélisation simple de la dépendance en puissance

On peut également bâtir un modèle simple de type "équation-bilan" pour décrire quantitativement le comportement en intensité des raies observées en fonction de la puissance d'excitation. On fait également les hypothèses que l'injection des porteurs se fait

de manière aléatoire, que les porteurs sont capturés par paires, et que les phénomènes de capture des porteurs sont indépendants les uns des autres et ne dépendent pas de l'état de charge de la boîte quantique. En introduisant les temps de recombinaison  $\tau_m$  associés aux différents états de charge de la boîte quantique (état à  $m$  paires électron-trou) il est aisé de déduire les probabilités  $P(n)$  à l'état stationnaire d'avoir  $n$  paires de porteurs à l'intérieur de la boîte. Soit  $1/\tau_a$  le taux d'injection des paires électron-trou. Cette quantité est reliée à la puissance incidente  $P$  par la relation  $P = B/\tau_a$  où  $B$  est un simple coefficient de proportionnalité. L'accroissement de la probabilité d'avoir  $n$  paires présentes dans la boîte quantique s'écrit pour  $n \geq 1$  :

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n+1)}{\tau_{n+1}} + \frac{P(n-1)}{\tau_a} - P(n) \left( \frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_n} \right) \quad (2.4)$$

En effet on entre dans une configuration à  $n$  paires électron-trou en partant de  $n+1$  paires et en recombinant une des  $(n+1)$  paires (premier terme de l'équation) ou en partant de  $n-1$  paires et en piégeant 1 paire (deuxième terme). De même, on sort de cette configuration (troisième terme) en piégeant une paire ou en recombinant une des  $n$  paires présentes.

Et pour  $n = 0$ , (2.4) s'écrit :

$$\frac{dP(0)}{dt} = \frac{P(1)}{\tau_r} - \frac{P(0)}{\tau_a} \quad (2.5)$$

En régime stationnaire ( $\forall n \geq 0, \frac{dP(n)}{dt} = 0$ ) on obtient par récurrence la relation suivante :

$$P(n) = \frac{\prod_{i=1}^n \tau_i}{\tau_a^n} P(0) \quad (2.6)$$

Les probabilités de présence s'expriment ainsi de la manière suivante :

$$P(n) = \frac{\left( \prod_{i=1}^n \tau_i \right) / \tau_a^n}{\sum_{k=0}^{+\infty} \left( \prod_{i=1}^k \tau_i \right) / \tau_a^k} \quad (2.7)$$

Cette expression très générale nécessite de connaître tous les temps de recombinaison  $\tau_n$ , ce qui bien entendu n'est généralement pas le cas.

Dans un premier temps, nous faisons l'hypothèse que la probabilité pour une paire électron-trou de se recombiner est indépendante à la fois du niveau dans lequel elle se

trouve et de l'état de charge total. Le taux de recombinaison de l'état associé à  $n$  paires électron-trou est égal à  $n$  fois le taux de recombinaison de chaque paire, pris égal à  $1/\tau_r$  :

$$\frac{1}{\tau_n} = \frac{n}{\tau_r} \quad (2.8)$$

Par exemple, le temps de vie de l'exciton est 2 fois plus long que celui du biexciton. Sous cette hypothèse, l'équation 2.4 se réécrit :

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n-1)}{\tau_a} + \frac{(n+1)P(n+1)}{\tau_r} - P(n) \left( \frac{1}{\tau_a} + \frac{n}{\tau_r} \right) \quad (2.9)$$

Les probabilités  $P(n)$  obéissent alors à une loi poissonnienne :

$$P(n) = \frac{e^{-\frac{\tau_r}{\tau_a}}}{n!} \left( \frac{\tau_r}{\tau_a} \right)^n \quad (2.10)$$

L'intensité de la raie X est proportionnelle à la probabilité de présence d'une paire électron-trou multipliée par la probabilité que cette paire se recombine. Ainsi, les intensités des raies associées à l'état exciton ( $I_X(P)$ ) et à l'état biexciton ( $I_{XX}(P)$ ) s'expriment en fonction de la puissance incidente  $P$  (rappelons que  $P = B/\tau_a$ ) de la manière suivante :

$$I_X(P) = A \frac{P(1)}{\tau_1} = \frac{AP}{B} e^{-\frac{P\tau_r}{B}} \quad (2.11)$$

$$I_{XX}(P) = A \frac{P(2)}{\tau_2} = \frac{A\tau_r P^2}{B^2} e^{-\frac{P\tau_r}{B}} \quad (2.12)$$

où  $A$  est un coefficient de proportionnalité. En définissant  $I_{sat} = A/\tau_r$  et  $P_{sat} = B/\tau_r$  on obtient finalement :

$$I_X(P) = I_{sat} \frac{P}{P_{sat}} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (2.13)$$

$$I_{XX}(P) = I_{sat} \frac{P^2}{P_{sat}^2} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (2.14)$$

Les courbes expérimentales pour les raies X et XX sont approchées en optimisant  $I_{sat}$  et  $P_{sat}$ . La forme générale de la dépendance en puissance des deux courbes est bien rendue par le modèle (figure 2.8), cependant l'intensité de saturation associée au biexciton est sous-estimée de plus d'un facteur 2. Ce rapport à saturation entre les intensités des raies X et XX suggère que le temps de recombinaison associé au biexciton est en fait 2 fois plus court (ou celui de l'exciton 2 fois plus long), puisqu'à saturation on peut considérer qu'un photon est émis par temps de vie.

C'est effectivement le cas si l'on prend en compte que les électrons et les trous arrivent dans la boîte quantique avec un moment angulaire aléatoire (ce qui est le cas

lorsque l'on excite de façon non résonante, au-dessus de la barrière de GaAs). Les électrons ont deux états de moment angulaire possibles :  $-1/2$  et  $+1/2$ . Les trous n'ont également que deux états de moment angulaire possibles :  $-3/2$  et  $+3/2$ . Comme les photons ne peuvent prendre qu'un spin  $-1$  ou  $+1$ , sur les 4 états quantiques possibles de l'exciton seuls 2 de ces états (états dits radiants) conduisent à une recombinaison de la paire électron-trou (voir figure 2.9). Chacun de ces états a la même probabilité  $1/4$  de se produire, la probabilité pour la paire électron-trou de se recombiner est donc de  $1/2$ , ce qui multiplie par 2 le temps de vie de l'exciton.

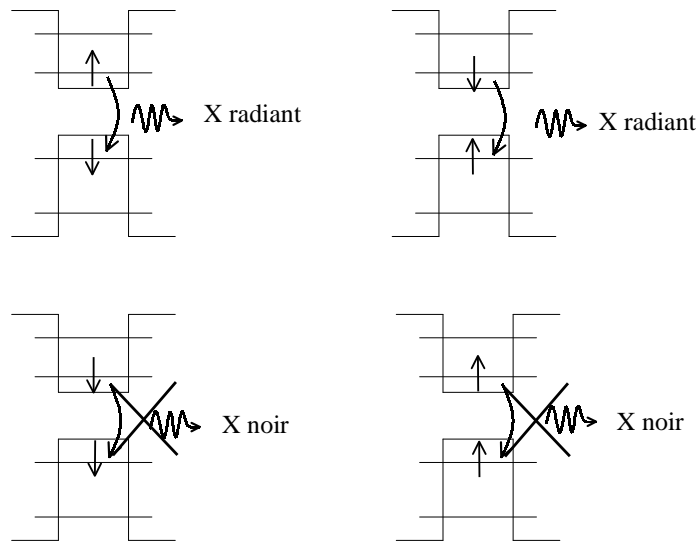


FIG. 2.9 – Schéma des quatre états d'excitons possibles.  $\uparrow$  représente un électron (resp. un trou) de spin  $+1/2$  (resp.  $+3/2$ ).  $\downarrow$  représente un électron (resp. un trou) de spin  $-1/2$  (resp.  $-3/2$ ). Seuls deux de ces états, dits radiants, conduisent à l'émission d'un photon. Les deux autres états, non radiants, sont dits noirs.

A partir des équations 2.4 écrites avec des temps de recombinaison différents pour l'exciton et le biexciton on peut dériver une solution numérique. Ces solutions sont notées  $I'_X(P)$  pour la raie X et  $I'_{XX}(P)$  pour la raie XX. La figure 2.8 présente les courbes d'intensité calculées par ce modèle. L'accord avec les courbes expérimentales est meilleur que dans le cas précédent.

Il est à noter que ce dernier modèle ne peut que constituer une approximation de la dynamique. D'une part, une description plus élaborée du temps de vie du biexciton devrait inclure des effets de corrélations entre particules sur la fonction d'onde biexcitonique [83].

D'autre part, on s'attend à ce que le temps de vie de l'exciton dépende de la façon dont cet état a été préparé, auquel cas la description devient nettement plus complexe.

## 2.3 Spectroscopie résolue en temps

Il existe une autre manière de distinguer les différentes raies, c'est d'étudier le comportement de leur intensité en fonction du temps. De plus, il est important de bien comprendre la dynamique des recombinaisons radiatives à l'intérieur d'une boîte quantique, en particulier dans le but d'émettre des photons uniques.

Grâce au montage de type Hanbury Brown et Twiss, décrit en annexe B, il est possible de mesurer l'intensité d'un signal lumineux dans le temps. Pour cela, on se place sous excitation pulsée et on sélectionne avec les monochromateurs la raie associée soit à l'exciton, soit au biexciton. Il suffit alors de déclencher l'entrée "start" de l'analyseur par un signal synchronisé avec les impulsions laser (délivré par le constructeur) et l'entrée "stop" par le signal associé à l'exciton (ou le biexciton). En pratique, on effectue le déclenchement inverse pour augmenter le nombre d'évènements de corrélation. On introduit un retard de 20 ns sur l'entrée "stop" pour visualiser la partie négative du temps de séparation  $\tau = t_{start} - t_{stop}$ . Le signal obtenu est directement la photoluminescence de l'exciton (ou du biexciton) dans le temps.

### 2.3.1 Mesures des temps de vie de l'exciton et du biexciton

Dans la section précédente, nous avons vu que les temps de recombinaison associés aux différents états de charge étaient une donnée essentielle pour décrire quantitativement les intensités des différentes raies. Les expériences de photoluminescence résolue dans le temps permettent d'obtenir ces temps de vie par une mesure directe. Sous faible puissance d'excitation (en dessous de la saturation de l'émission associée à l'exciton) le temps de vie de l'exciton s'identifie au temps de déclin (de type monoexponentiel) du signal mesuré. En effet à faible puissance d'excitation le système est directement préparé dans l'état exciton.

Si maintenant on sélectionne spectralement la raie XX, seuls les cas où la boîte quantique est initialement préparée dans l'état biexciton contribueront au signal résolu en temps. Ainsi, même à faible puissance d'excitation tout se passe comme si le système était préparé dans l'état biexciton.

La figure 2.10 montre la photoluminescence associée à l'exciton pour une puissance

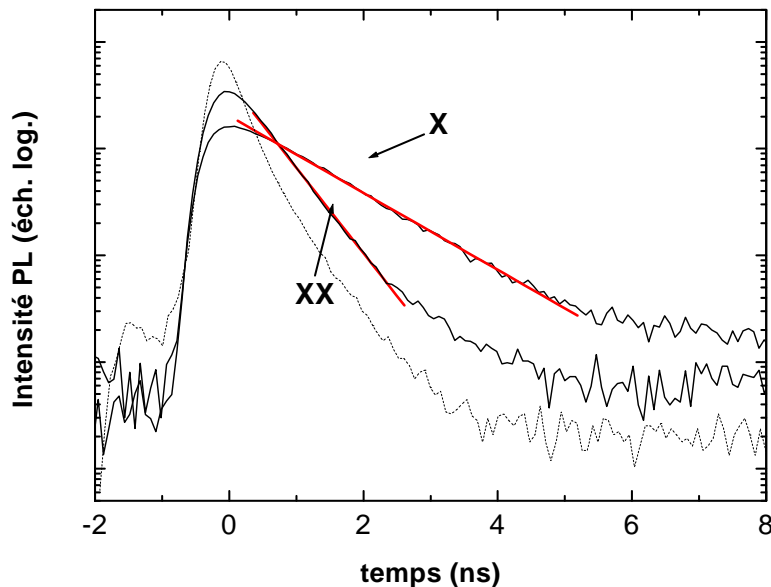


FIG. 2.10 – Signal résolu en temps de l'intensité de photoluminescence pour les états exciton (X) et biexciton (XX), obtenu à faible excitation ( $0.1P_{sat}$  pour X et  $0.5P_{sat}$  pour XX). Les temps de vie obtenus par régression logarithmique sont de  $\sim 1.5 \pm 0.1$  ns pour  $\tau_X$  et de  $\sim 0.5 \pm 0.1$  ns pour  $\tau_{XX}$ . La courbe en pointillé est le signal résolu en temps de l'émetteur laser. Le temps de résolution du dispositif expérimental est de  $\sim 400$  ps.

incidente de  $0.1 \mu\text{W}$ , correspondant à  $0.1P_{sat}$ , où  $P_{sat}$  est la puissance de saturation de la raie X. Par régression logarithmique on mesure  $\tau_X \sim 1.5 \pm 0.1$  ns. Cette valeur est tout à fait en accord avec les mesures typiques connues du temps de vie de l'exciton pour ce type de boîtes quantiques [7, 84].

Le signal associé au biexciton (figure 2.10) pour une puissance incidente de  $0.5P_{sat}$ , donne une valeur de  $\tau_{XX} \sim 500 \pm 100$  ps, typique des temps de vie de biexciton reportés dans la littérature [84]. Cette valeur de 500 ps est très proche de la limite de résolution du dispositif expérimental (400 ps), ce qui induit une incertitude assez grande sur cette mesure (de l'ordre de 20%). Ce grand décalage entre le temps de vie de l'exciton et du biexciton (rapport égal à 3) nous confirme dans l'idée que notre exciton est un mélange statistique d'excitons radiants et non radiants. Ces mesures nous permettent plutôt de privilégier le modèle  $\tau_X = 4\tau_{XX}$  sur le modèle  $\tau_X = 2\tau_{XX}$ , présentés en section 2.2.2.4. Notons que cette approche ne tient pas compte d'un changement des temps de vie de ces états causé par la modification des fonctions d'onde due aux effets Coulombiens [83].

Notons que les signaux précédents résolus en temps présentent un front de montée du signal quasi-vertical. En effet le front de montée est dû au temps de capture des paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique ( $\sim 40$  ps) que l'on ne peut observer à cause de la résolution de l'appareillage ( $\sim 400$  ps). A plus forte excitation (figure 2.11), le signal associé à l'exciton n'est plus de type monoexponentiel, le remplissage de l'état de charge supérieur n'est alors plus négligeable. L'apparition d'un état biexciton retarde la recombinaison de l'exciton. Le front de montée est alors dû à la préparation de l'état exciton à partir de l'état biexciton. Ces résultats constituent une première mise en évidence de la recombinaison séquentielle des paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique. La recombinaison du biexciton se fait avant celle de l'exciton. Nous verrons une démonstration plus forte de cet effet dans la partie 3.2. Une description de l'émission dans le temps associée à l'exciton peut être aisément obtenue : c'est l'objet de la partie suivante.

### 2.3.2 Evolution des intensités résolues en temps avec la puissance

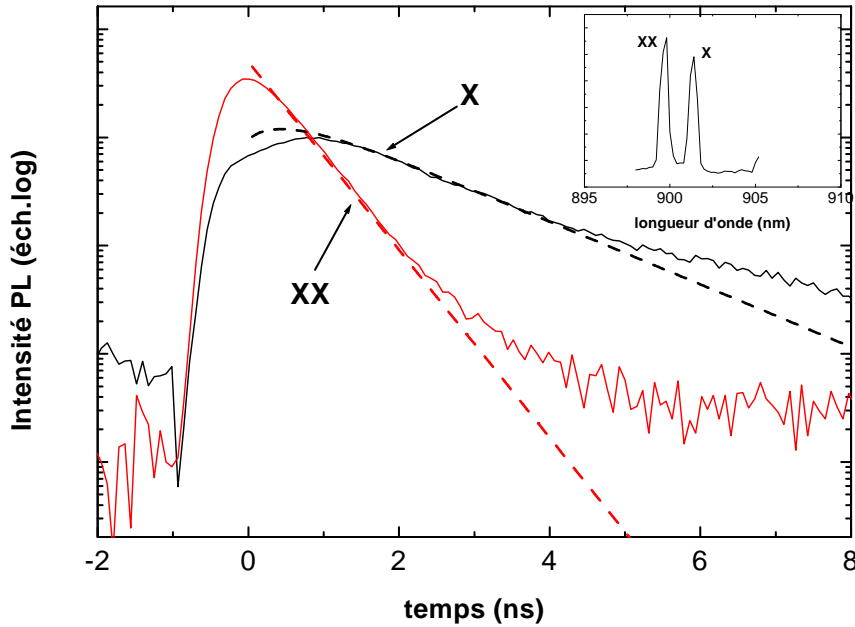


FIG. 2.11 – Signal résolu en temps de l'intensité de photoluminescence pour les états exciton (X) et biexciton (XX) obtenu pour une puissance de  $1.5P_{sat}$ . Les courbes en pointillés sont les solutions 2.19 et 2.20, les seuls paramètres sont des coefficients de proportionnalité multiplicatifs. Le modèle prend bien en compte la montée dans le temps du signal de la raie X, retardée par la présence du biexciton. L'encart montre le spectre de la boîte quantique à cette puissance d'excitation.



Nous faisons les hypothèses déjà invoquées plus haut. A savoir : seules des paires de porteurs sont capturées par la boîte quantique, et les processus de capture et de relaxation sont aléatoires. En outre, les expériences ont été réalisées sous des conditions d'excitation moyenne (en dessous de la saturation de l'émission associée au biexciton); nous pouvons alors considérer que les probabilités d'occupation des niveaux autres que le niveau fondamental sont nulles. Ceci se traduit dans la suite de l'exposé par  $P(n > 2) = 0$ . L'impulsion laser remplit la boîte quantique à  $t = 0$  ns (temps de capture et de relaxation des paires électron-trou négligeables) d'un nombre moyen  $\langle n \rangle$  de paires électron-trou. A partir de cet instant les probabilités d'occupation  $P(n)$  de la boîte quantique en paires électron-trou sont régies par le système d'équations suivant :

$$\frac{dP(0)}{dt} = \frac{P(1)}{\tau_X} \quad (2.15)$$

$$\frac{dP(1)}{dt} = \frac{P(2)}{\tau_{XX}} - \frac{P(1)}{\tau_X} \quad (2.16)$$

$$\frac{dP(2)}{dt} = -\frac{P(2)}{\tau_{XX}} \quad (2.17)$$

où  $\tau_X$  et  $\tau_{XX}$  sont respectivement les temps de vie de l'exciton et du biexciton. Ce système d'équations est identique à 2.9 avec un taux de capture des paires électron-trou  $1/\tau_a$  égal à 0. Sous l'hypothèse d'un remplissage de la boîte quantique suivant une statistique poissonnienne, on a initialement :

$$P(0)[t = 0] = e^{-\langle n \rangle} \quad P(1)[t = 0] = \langle n \rangle e^{-\langle n \rangle} \quad P(2)[t = 0] = \frac{\langle n \rangle^2 e^{-\langle n \rangle}}{2} \quad (2.18)$$

La résolution des équations donne alors la solution suivante pour  $P(1)$  et  $P(2)$  :

$$P(1) = \frac{\langle n \rangle^2 e^{-\langle n \rangle}}{2} \frac{\tau_X}{\tau_{XX} - \tau_X} (e^{-t/\tau_{XX}} - e^{-t/\tau_X}) + \langle n \rangle e^{-\langle n \rangle} e^{-t/\tau_X} \quad (2.19)$$

$$P(2) = \frac{\langle n \rangle^2 e^{-\langle n \rangle}}{2} e^{-t/\tau_{XX}} \quad (2.20)$$

$\langle n \rangle$  peut être simplement obtenu par le rapport de la puissance à la puissance de saturation. On estime  $\langle n \rangle \sim 1.5$ . Les seuls paramètres ajustables sont des coefficients multiplicatifs, qui translatent verticalement les courbes sur la figure 2.11. Les courbes expérimentales sont très bien approchées pour  $\tau_X = 1.5$  ns et  $\tau_{XX} = 0.5$  ns, ce qui confirme les valeurs obtenues dans la partie précédente.

A plus forte puissance d'excitation, le déclin associé au biexciton passe lui aussi d'une allure monoexponentielle à une forme biexponentielle au fur et à mesure que des états de charge supérieure apparaissent.

Des résultats tout à fait similaires ont été obtenus par C. Santori *et al.* [82] et par G. Bacher *et al.* sur des boîtes quantiques CdSe/ZnSe [83].

## 2.4 Largeur de raie excitonique et phénomène de déphasage

Pour un atome, la largeur de raie est limitée par sa durée de vie radiative. Une boîte quantique, contrairement à un atome, n'est pas un système isolé mais un système électronique fortement couplé à son environnement. L'étude de sa largeur de raie permet d'obtenir des signatures claires de l'effet de ce couplage.

A 8 K, la largeur des raies d'émission est, à faible excitation, inférieure à la résolution spectrale ( $30 \mu\text{eV}$ ) de notre montage. Les études sur ce sujet sont récentes et très peu nombreuses [6, 85]. Des mesures, par des expériences de mélange à quatre ondes sur un ensemble de boîtes quantiques InAs/GaAs, de la largeur intrinsèque d'une raie d'émission d'une boîte quantique unique montrent que cette largeur serait de l'ordre de  $10 \mu\text{eV}$  [86] à 7 K. Une extrapolation à très basse température conduit à une largeur de raie proche de  $0.7 \mu\text{eV}$ . Notons qu'une telle largeur de raie est associée (par la relation d'incertitude d'Heisenberg) à une durée de vie radiative de  $\sim 1 \text{ ns}$ , soit une valeur typique du temps de vie radiatif des boîtes quantiques. Ces résultats montrent l'influence du couplage aux phonons, par la température, sur l'élargissement des raies.

Parallèlement, le rôle des phonons acoustiques et des porteurs de charge additionnels sur la largeur de raie a été étudié par C. Kammerer *et al.* [87]. Ils mesurent directement la largeur de la raie X par une méthode interférométrique, avec une résolution de  $0.2 \mu\text{eV}$ . Cette étude conduit à des valeurs de l'ordre de  $10 \mu\text{eV}$  pour la largeur intrinsèque de raie. L'extrapolation à  $T = 0 \text{ K}$  conduit à une largeur de  $7.5 \mu\text{eV}$ , soit bien plus élevée que celle ( $\sim 0.7 \mu\text{eV}$ ) associée à un temps de vie typique des boîtes quantiques. Cet élargissement résiduel est lié aux fluctuations de l'environnement électrostatique de la boîte quantique.

En effet, l'influence de l'environnement électrostatique est évident lorsque l'on étudie la largeur de la raie X d'une boîte quantique unique en fonction de la puissance d'excitation, sous excitation continue (voir figure 3.16). La largeur de raie augmente avec la puissance d'excitation. En effet, celle-ci est proportionnelle au nombre de porteurs créés dans la couche de mouillage environnante, qui causent une fluctuation de l'environnement électrostatique de la boîte quantique par interaction coulombienne.

La température a un rôle majeur dans l'élargissement des raies d'émission d'une

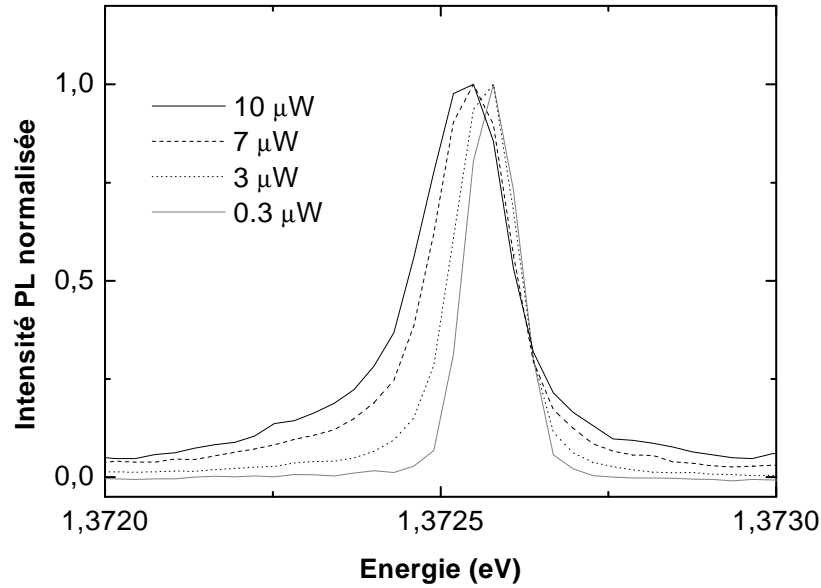


FIG. 2.12 – Spectres normalisés de la raie X sous excitation continue pour quatre puissances d'excitation différentes. La largeur de raie augmente avec la puissance d'excitation. Le nombre croissant de porteurs créés dans la couche de mouillage environnante cause cet élargissement par fluctuation électrostatique.

boîte quantique unique. Asaoka *et al.* [88] montrent que la largeur de la transition dépend linéairement de la température entre 40 K et 80 K. Des études de T. Takagahara [89] et Xin-Qi Li *et al.* [90], basées sur un couplage avec les phonons acoustiques, prédisent une dépendance affine de l'élargissement avec la température de 0 K à plus de 100 K. Des mesures spectroscopiques en fonction de la température, utilisant un microscope optique à champ proche (SNOM), sur une boîte quantique unique [11, 12, 91] ont montré que la largeur homogène de raie atteint 10 meV à 300 K. Cet élargissement est causé par l'interaction avec les phonons [12, 91].

Ces phénomènes d'élargissement de raie ont des conséquences sur l'emploi des boîtes quantiques pour l'électrodynamique quantique en cavité ainsi que pour la réalisation de sources de photons uniques. En premier lieu, les expériences d'électrodynamique quantique en cavité devront être réalisées à basse température. En effet, pour exploiter pleinement l'effet Purcell, la largeur de raie de l'émetteur doit être inférieure à celle du mode de cavité (nous y reviendrons plus en détail dans le chapitre 4). Deuxièmement, ces effets d'élargissement de raie impliquent également une limitation en température de l'emploi de la source de photons uniques. Il faut en effet que les raies X et XX soient spectralement

séparées pour garantir l'émission d'un et d'un seul photon par impulsion. Or, la séparation entre ces deux raies ( $1 - 4$  meV pour les boîtes quantiques InAs/GaAs) est inférieure à leur largeur homogène à température ambiante.

## 2.5 Conclusion

La spectroscopie fine d'une boîte quantique unique est très complexe et de nombreuses raies ne sont pas clairement attribuées à un état quantique. Le schéma 2.5 montre en effet qu'à partir de trois paires électron-trou piégées par la boîte quantique, les états quantiques se multiplient (voir aussi [78]), ce qui rend l'identification des raies, également nombreuses, très difficile. Les résultats présentés dans cette section permettent d'identifier sans ambiguïté les raies associées au biexciton et à l'exciton. Nous verrons dans le chapitre suivant qu'une expérience de corrélation entre photons associés à l'exciton et au biexciton confirme cette identification. Ces résultats ont été observés sur plusieurs boîtes quantiques et constituent donc une propriété intrinsèque des boîtes quantiques. Ces caractéristiques ont été également observées pour des boîtes quantiques à fluctuation d'interface de type GaAs/AlGaAs [18] et des boîtes quantiques  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  [92].

La mesure des temps de vie de l'exciton et du biexciton laisse penser que l'état exciton est un mélange statistique d'excitons radiants et d'excitons noirs. Nous pensons également que notre état exciton étudié est un exciton neutre et non un exciton chargé. En tout cas, nous n'observons qu'une seule raie principale de croissance linéaire, et donc associée à un état exciton. Ceci ne constitue en aucun cas une règle générale puisque d'autres groupes [19] observent pour une même boîte quantique deux raies X différentes, associées à l'exciton neutre et à l'exciton chargé. Ces observations diverses peuvent provenir de différences dans le dopage résiduel du matériau. E. S. Moskalenko *et al.* [93] observent également des raies qu'ils associent à des états exciton chargés négativement. De plus, les intensités de ces raies varient beaucoup les unes par rapport aux autres suivant l'énergie d'excitation. Nous n'observons pas de tels comportements avec nos boîtes quantiques.

Enfin, les temps de vie de l'ordre de 1 ns pour l'état exciton laissent espérer des taux de répétition aussi élevés que 1 GHz pour notre source de photons uniques. Une telle rapidité ne peut être obtenue avec d'autres émetteurs pour sources à un photon (voir section 1.6). Les centres N-V ou les molécules ont des temps de vie souvent de l'ordre de 10 ns et les nanocristaux de 10 – 20 ns.



## Chapitre 3

# Génération d'états quantiques de la lumière

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'une boîte quantique unique constitue un atome artificiel. Dès lors, il est très tentant d'essayer d'utiliser cet atome artificiel pour reprendre des expériences réalisées sur des atomes [23, 25, 26] pour générer des états quantiques de la lumière. Parmi ceux-ci, on pense à l'émission de photons uniques ainsi qu'à l'émission de paires de photons. Après avoir fait un rapide historique de l'émission de photons uniques, nous présenterons des expériences consacrées à la statistique des photons émis par une boîte quantique unique.

### 3.1 Dégrouperement de photons pour une boîte quantique unique

#### 3.1.1 Principe et historique du dégroupement de photons

L'émission de photons uniques est une des manifestations des états non-classiques de la lumière. Par non-classique, on entend que les propriétés de la lumière ne peuvent être transcrites dans le formalisme classique des ondes électromagnétiques. Il est en effet nécessaire de recourir au formalisme quantique pour en décrire toutes les caractéristiques [94].

L'émission d'un oscillateur quantique anharmonique est caractérisée par le fait que les photons sont émis de manière "dégrouperée". La probabilité d'émettre un second photon chute à 0 juste après l'émission d'un premier photon. Dans le cas d'une émission aléatoire

de photons (état cohérent), cette probabilité est au contraire constante dans le temps et indépendante des évènements antérieurs.

Prenons l'exemple d'un système à deux niveaux (un atome, ...) pour illustrer ce phénomène de dégroupement de photons. Lorsque l'atome est placé dans son état excité, il passe après un certain temps de l'état excité à l'état fondamental en émettant un photon : il effectue un saut quantique. Dès lors, l'atome ne peut pas réémettre immédiatement un autre photon. Avant de détecter un second photon, il faut attendre que l'atome soit à nouveau placé dans son état excité afin qu'il puisse subir une nouvelle émission spontanée. Ainsi, la probabilité d'observer un photon juste après le saut quantique est nulle puis augmente avec le temps jusqu'à une valeur constante (cas de l'atome à deux niveaux). Ce temps mort, nécessaire à la réexcitation de l'atome, est une signature absolue d'un émetteur unique, puisqu'à partir de deux émetteurs la probabilité d'observer un second photon juste après le saut est strictement non nulle.

Dans le cas des sources classiques thermiques on observe au contraire l'effet de groupement de photons [95, 96]. Après avoir détecté un photon la probabilité d'en détecter un juste après est plus élevée que la probabilité moyenne de détecter un photon. Ce phénomène peut être vu comme un simple effet des fluctuations statistiques d'intensité dans le temps d'une source classique thermique, qui se traduisent par une distribution super-poissonienne des photons. Enfin, dans le cas d'une source cohérente (laser) cette probabilité est uniforme dans le temps. Une telle source a une statistique poissonienne et la probabilité d'arrivée des photons est indépendante du temps.

Ces effets peuvent être mis en évidence grâce au montage expérimental de Hanbury Brown et Twiss, décrit en annexe B. Ce montage a d'abord été utilisé pour mettre en évidence les propriétés de groupement de photons émis par des sources classiques à l'équilibre thermique [95]. Le premier effet de dégroupement de photons a été observé pour la première fois par H. J. Kimble *et al.* sur des atomes de sodium dans un jet atomique [23]. Cependant la probabilité de réémettre un second photon juste après en avoir détecté un n'est pas rigoureusement nulle. Les atomes se prêtent en effet mal à cette expérience puisqu'ils sont difficiles à isoler. Kimble utilisait un flux d'atomes qu'il faisait circuler devant son montage ; on voit dès lors que la probabilité que deux atomes émettent simultanément des photons n'est pas nulle. Depuis ces propriétés de dégroupement de photons ont été observées sur un grand nombre d'émetteurs isolés tels que des ions [59], des nanocristaux [65], des centres N-V de diamant [45, 97], des molécules [42]...

### 3.1.2 Protocole utilisé pour générer des photons uniques

*A priori*, on peut utiliser les états discrets d'une boîte quantique de deux façons différentes pour émettre des photons de manière dégroupée<sup>1</sup>. La première solution, la plus proche du cas atomique, consisterait à utiliser une boîte quantique dopée et à faire cascader un électron entre les états électroniques de conduction. Mais ce sont les mécanismes de relaxation non radiatifs qui dominent très majoritairement sur les transitions radiatives entre les différents niveaux [8].

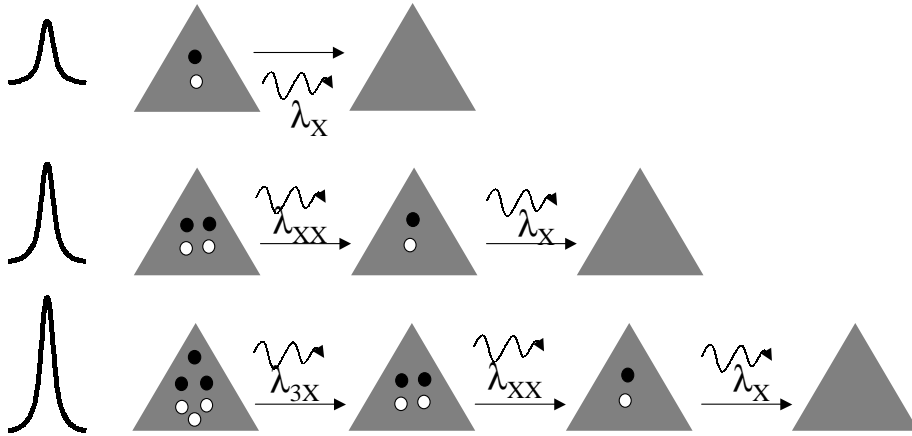


FIG. 3.1 – Schéma de principe pour la génération de trains de photons uniques par une boîte quantique. Une impulsion laser déclenche à  $t = 0$  une cascade de porteurs vers leurs niveaux fondamentaux respectifs. La recombinaison séquentielle des porteurs se fait à des énergies différentes. On sélectionne alors spectralement le dernier photon émis à la longueur d'onde  $\lambda_X$ .

La seconde solution, proposée par J.-M. Gérard et B. Gayral [29], consiste à injecter des paires électron-trou car le système est également discret pour les électrons et les trous. A  $t = 0$ , une impulsion laser remplit la boîte quantique de paires électron-trou et déclenche une cascade rapide ( $\sim 30$  ps) des porteurs dans leurs niveaux fondamentaux respectifs. La durée de l'impulsion doit être courte devant le temps de vie radiatif de la boîte quantique (la durée de quelques picosecondes fournie par un laser Titane-saphir pulsé convient très bien). Ainsi, la probabilité qu'une paire électron-trou, créée au début de l'impulsion, se recombine avant la fin de l'excitation est négligeable. L'excitation se fait de manière non résonante dans le continuum d'énergie de la barrière de GaAs. Cette excitation non résonante est un avantage considérable par rapport à d'autres émetteurs

<sup>1</sup>Nous avons vu au chapitre 1 qu'une injection électrique contrôlée par blocage de Coulomb avait également été proposée [22].



de photons uniques. Elle permet en effet de séparer les processus d'excitation de ceux d'émission. Le filtrage spectral intervenant par la suite se trouve nettement simplifié.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les porteurs, une fois répartis dans leurs niveaux respectifs, se recombinaient à des énergies différentes à cause de l'interaction coulombienne entre les charges (voir schéma 3.1). En particulier, leur recombinaison séquentielle conduit toujours à la situation où une seule paire électron-trou (exciton) reste à l'intérieur de la boîte quantique<sup>2</sup>. On exploite cet effet pour ne sélectionner spectralement qu'un seul photon par impulsion. On filtre ainsi la photoluminescence avec un spectromètre positionné à la longueur d'onde  $\lambda_X$  de la raie X (voir figure 3.2). Seule la recombinaison de la dernière paire électron-trou (état exciton) conduit à un photon de longueur d'onde  $\lambda_X$ .

Chaque impulsion laser conduit ainsi à l'émission d'un et d'un seul photon en sortie du spectromètre, à condition toutefois que l'excitation soit suffisamment intense pour créer à chaque impulsion au moins une paire électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique. Il faut également que les impulsions laser soient suffisamment séparées dans le temps pour que toutes les paires de porteurs aient eu le temps de se recombinaison. C'est bien le cas dans notre situation ; le temps de vie de l'état exciton  $\sim 1$  ns est nettement inférieur au temps de répétition du laser  $T_{las} \sim 12$  ns. La source ainsi obtenue émet donc des trains de photons uniques dont le cycle de répétition est celui du laser excitateur  $T_{las}$ .

Notons qu'au lieu de sélectionner la raie associée à l'état exciton, on peut tout aussi bien sélectionner celle associée à l'état biexciton (ou même tout autre état conduisant à l'émission d'un seul photon) : on n'émet également qu'un seul photon par impulsion. Il faut toutefois augmenter la puissance d'excitation pour injecter au moins deux paires électron-trou par impulsion (et non au moins une dans le cas où l'on sélectionne la raie X), ce qui se traduit en pratique par une augmentation du signal de fond parasite.

### 3.1.3 Fonction d'auto-corrélation du second ordre

Le montage de Hanbury Brown et Twiss permet de mesurer directement la fonction d'auto-corrélation du second ordre du signal. Elle révèle la corrélation du signal avec lui-même. En d'autres termes, elle consiste en la probabilité jointe de détecter un photon à l'instant  $t_1$  et un autre photon à l'instant  $t_2$ .

Une excellente introduction peut être trouvée dans [96]. La probabilité  $P_2(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2)$

---

<sup>2</sup>A condition qu'au moins une paire électron-trou ait été injectée.

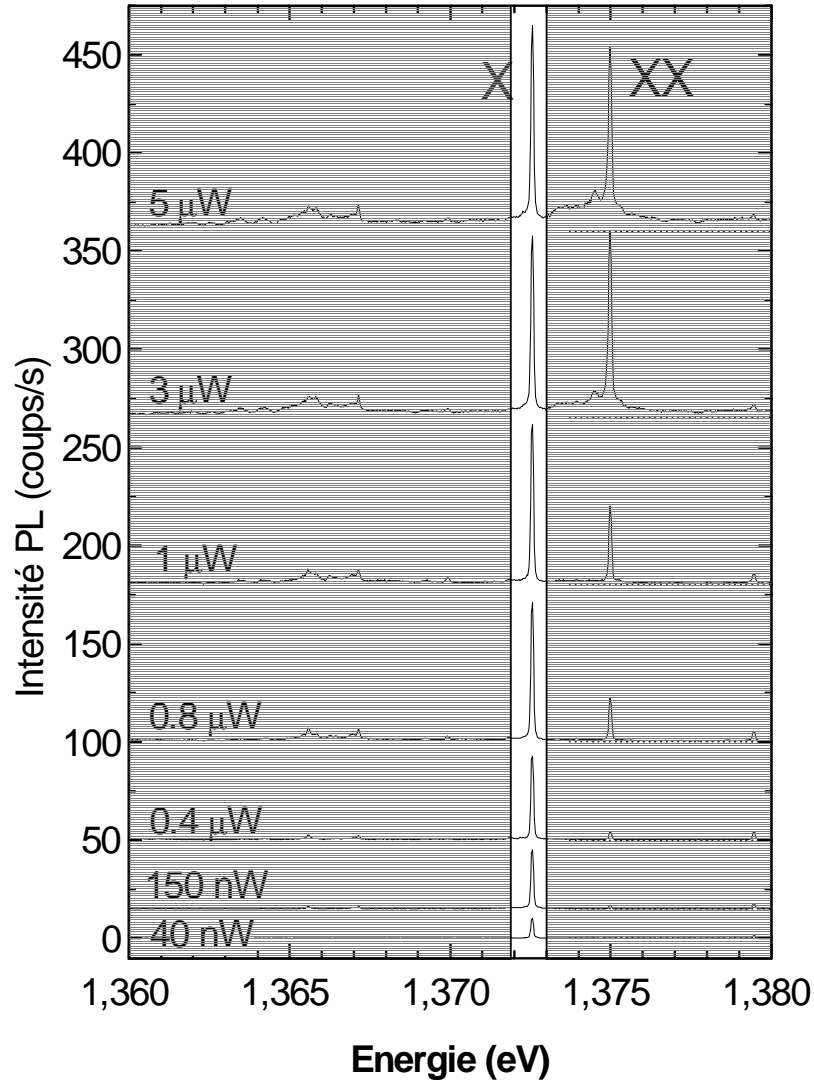


FIG. 3.2 – Pour générer un et un seul photon par impulsion laser, on sélectionne spectralement la raie X à la longueur d'onde  $\lambda_X$ . Seul le dernier photon émis lors de la cascade radiative de porteurs est ainsi conservé à la sortie du spectromètre.

de détecter un photon à l'instant  $t_1$  et un autre à  $t_2$  (avec  $t_2 > t_1$ ) s'exprime de la façon suivante :

$$P_2(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = A_1 A_2 \langle a(\mathbf{r}_1, t_1)^\dagger a(\mathbf{r}_2, t_2)^\dagger a(\mathbf{r}_2, t_2) a(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \quad (3.1)$$

où  $A_1$  et  $A_2$  sont de simples coefficients de proportionnalité dépendant des caractéristiques des photodétecteurs.  $a$  et  $a^\dagger$  sont les opérateurs d'annihilation et de création pour le mode.  $\langle \rangle$  est une moyenne sur l'ensemble des réalisations. La position des opérateurs est fondamentale, ils sont dans l'arrangement dit normal. On trouve plus couramment l'expression

utilisant les opérateurs intensité  $\mathbf{I}(\mathbf{r}_i, t_i)$  :

$$P_2(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = A_1 A_2 \langle : \mathbf{I}(\mathbf{r}_1, t_1) \mathbf{I}(\mathbf{r}_2, t_2) : \rangle \quad (3.2)$$

où  $::$  dénote un arrangement normal des opérateurs. On introduit finalement la fonction d'auto-corrélation du second ordre  $g^{(2)}(\tau)$  :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I(t) I(t + \tau) : \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = \frac{\langle a(t)^\dagger a(t + \tau)^\dagger a(t + \tau) a(t) \rangle}{\langle a(t)^\dagger a(t) \rangle^2} \quad (3.3)$$

Il est important de noter que la valeur de  $g^{(2)}(\tau)$  est indépendante du taux de détection et de collection du système.

### Exemples de calculs de $g^{(2)}(0)$

- source à un photon

Il s'agit d'un état de Fock représenté par le ket  $|0, \dots, 0, 1, 0, \dots, 0\rangle$  : 1 photon dans le mode  $q$ . Ce mode  $q$  est le mode de collection de notre dispositif expérimental couplé aux modes d'émission de la boîte quantique unique. Pour simplifier les notations ce ket sera par la suite noté  $|1_q\rangle$ . C'est l'état de notre système à  $\tau = 0$ .

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle 1_q | a_q^\dagger a_q^\dagger a_q a_q | 1_q \rangle}{\langle 1_q | a_q^\dagger a_q | 1_q \rangle^2} \quad (3.4)$$

L'opérateur  $a_q$  appliqué à  $|1_q\rangle$  donne l'état  $|0\rangle$ .  $a_q$  appliqué à ce dernier état donne 0, il en est de même pour  $g^{(2)}(0)$ . Une source à un photon est donc caractérisée par une fonction d'auto-corrélation du second-ordre strictement nulle.

- source à 2 photons

L'état de Fock correspondant est  $|2_q\rangle$ .  $a_q |2_q\rangle = \sqrt{2} |1_q\rangle$  d'où :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle 2_q | a_q^\dagger a_q^\dagger a_q a_q | 2_q \rangle}{\langle 2_q | a_q^\dagger a_q | 2_q \rangle^2} = \frac{2}{2^2} = \frac{1}{2} \quad (3.5)$$

Le calcul est aisément reproductible pour un état à  $n$  photons. Ainsi dès que la source contient plus d'un émetteur la fonction  $g^{(2)}(0)$  dépasse la valeur  $1/2$ .

- état cohérent

C'est le cas de l'émission délivrée par un laser monomode. Cet état cohérent monomode noté  $|\alpha\rangle$  est vecteur propre de  $a_q$  et  $a_q^\dagger$ , par conséquent  $g^{(2)} = 1$ . Un état cohérent est donc caractérisé par le fait que sa fonction d'auto-corrélation du second ordre est constante, égale à 1.

- source classique thermique

La fonction d'auto-corrélation du second ordre s'écrit alors à  $\tau = 0$  :

$$g^{(2)}(\tau = 0) = \frac{\text{Tr}(\rho_t a_q^\dagger a_q^\dagger a_q a_q)}{(\text{Tr}(\rho_t a_q^\dagger a_q))^2} \quad (3.6)$$

où  $\rho_t$  est l'opérateur densité du système. Pour un gaz de photons à l'équilibre thermique, l'opérateur densité s'exprime de la façon suivante [98] :

$$\rho_t = (1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}) \sum_{n=0}^{+\infty} e^{-\frac{n\hbar\omega}{k_B T}} |n_q\rangle \langle n_q| \quad (3.7)$$

avec  $\omega$  la fréquence des photons émis,  $T$  la température, et  $k_B$  la constante de Boltzmann. L'équation 3.6 s'écrit alors :

$$g^{(2)}(\tau = 0) = \frac{\sum_{n=0}^{+\infty} n(n+1) e^{-\frac{n\hbar\omega}{k_B T}} \left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}\right)}{\left(\sum_{n=0}^{+\infty} n e^{-\frac{n\hbar\omega}{k_B T}} \left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}\right)\right)^2} \quad (3.8)$$

Après quelques calculs, on obtient :

$$g^{(2)}(\tau = 0) = 2 \quad (3.9)$$

Les lois classiques montrent plus généralement que  $g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}(\tau)$ , ce qui prouve bien que le dégroupement de photons est un effet purement quantique. L'interprétation semi-classique du phénomène de groupement de photons consiste à dire que les fluctuations thermiques induisent des fluctuations d'intensité. Les photodétections ne se font donc pas totalement au hasard, elles sont plus nombreuses quand l'intensité est élevée. Ce groupement de photons peut-être aussi vu comme une manifestation de la statistique de Bose-Einstein. Les fonctions d'onde de ces particules indistinguables interfèrent de manière constructive et accroissent la probabilité de détecter un photon juste après un autre. Ainsi pour une source thermique,  $g^{(2)}(\tau)$  est égale à 2 en  $\tau = 0$ , puis diminue au cours du temps pour atteindre 1 comme valeur limite.

Plus généralement, on dira qu'une source est classique avec groupement de photons lorsque  $g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}(\tau)$ . Une source est dite de nature quantique si elle présente des propriétés de dégroupement de photons, c'est à dire si  $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau)$ .

Sous excitation pulsée, la fonction d'auto-corrélation du second ordre prend une forme particulière qu'il convient d'explicitier. Si l'on fait l'auto-corrélation du signal laser on obtient des pics identiques séparés par la période de répétition du laser  $T_{las}$ , comme le

montre la figure 3.3. Ces pics naissent de la détection de photons émis pour des impulsions différentes. En effet, si le temps de vie de l'émetteur (ou durée de l'impulsion dans le cas du laser) est inférieur à  $T_{las}$ , le signal de photoluminescence est composé de trains de photons séparés par la période de répétition du laser. Ainsi, si un photon est détecté à l'instant  $\tau = 0$  sur la photodiode "start", la détection d'un second photon sur la diode "stop" ne pourra être observée qu'à des temps  $\tau$  proportionnels à  $T_{las}$ , avec une incertitude temporelle donnée par le temps de vie de l'émetteur. Les pics à  $\tau = nT$  reflètent donc la probabilité conditionnelle de détecter un photon durant une impulsion, sachant qu'un premier photon a été détecté au cours de l'impulsion émise  $nT$  plus tôt. Par exemple le pic à  $\tau = 2T_{las}$  naît de la détection d'un photon émis à  $\tau = nT_{las}$  et d'un deuxième émis à  $\tau = (n + 2)T_{las}$ , où  $n$  est un nombre entier. Ces deux événements sont bien indépendants car avant l'arrivée de l'impulsion laser le système est revenu dans son état fondamental. Les pics de corrélation ont une largeur qui correspond au temps de vie de l'émetteur (ou à la durée de l'impulsion dans le cas du laser). L'expérience n'est facilement interprétable que si le temps de vie de l'émetteur est nettement inférieur à  $T_{las}$ , sinon les pics se chevauchent. Cette condition est vérifiée dans nos expériences puisque le temps de vie de l'exciton est de l'ordre de la nanoseconde alors que  $T_{las} \sim 12$  ns. C'est donc l'intensité intégrée des pics qui donne la valeur de  $g^{(2)}(\tau)$  à cet instant.

Pour une source laser (voir figure 3.3), le pic à  $\tau = 0$  a la même intensité que les autres pics. Ceci illustre que les photons arrivent indépendamment du temps. En effet, d'après l'équation 3.3, si aucune corrélation n'existe entre la présence de photons aux instants  $t$  et  $t + \tau$  (ce qui est bien le cas pour deux impulsions laser distinctes) alors  $g^{(2)}(\tau) = 1$ . En revanche, dans le cas d'une source à un photon, la probabilité de détecter deux photons simultanément est nulle : un et un seul photon est émis à la fois au cours d'une impulsion laser et les photons uniques émis sont indivisibles par la lame séparatrice. Dans ce contexte, le pic à  $\tau = 0$  est absent. Quant aux autres pics à  $\tau = nT$  ( $n \neq 0$ ), leur intensité normalisée est égale à 1.

Le montage expérimental est décrit de façon détaillée dans l'annexe B. Les photons sont envoyés sur une lame séparatrice qui divise le signal en deux faisceaux de même intensité. Chaque faisceau est ensuite détecté par une photodiode. Une photodiode est reliée à l'entrée "start" d'un analyseur et l'autre photodiode à l'entrée "stop". L'analyseur enregistre les corrélations entre les signaux détectés sur les entrées "start" et "stop" en fonction de leur séparation dans le temps  $\tau = t_{stop} - t_{start}$ . Les photodiodes ont un temps

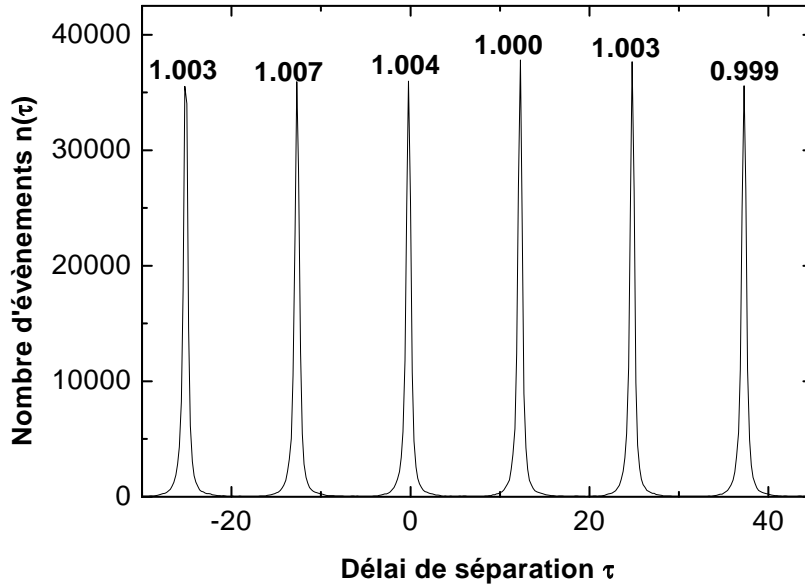


FIG. 3.3 – Histogramme de l'auto-corrélation du signal laser. Le nombre d'évènements détectés est donné en fonction du délai de séparation  $\tau$  entre une détection sur l'entrée "start" et une autre sur l'entrée "stop". Les nombres au-dessus des pics sont les valeurs de  $g^{(2)}(\tau)$  à ces instants.  $g^{(2)}(\tau)$  est égale à 1 pour tous les pics, ce qui correspond bien à un état cohérent.

d'extinction de l'ordre de la dizaine de nanosecondes après la détection d'un photon. C'est pourquoi ce montage nécessite bien l'emploi de deux photodiodes car l'on veut connaître la probabilité qu'un deuxième photon soit émis après un premier photon avec un délai de séparation aussi proche possible que 0. L'analyseur enregistre tous les évènements correspondant à une impulsion sur l'entrée "start" et, à partir de cet instant, la première impulsion qui arrive sur l'entrée "stop". Après renormalisation par le nombre total d'évènements et pour une accumulation d'un nombre infini d'évènements, l'analyseur délivre exactement la probabilité de détecter à l'instant  $\tau$  la première impulsion "stop" après détection d'une impulsion "start" à  $\tau = 0$ . La probabilité que nous recherchons est en fait la probabilité de détecter une impulsion "stop" à l'instant  $\tau$  (pas uniquement la première) après détection d'une impulsion "start". Pour de très faibles flux de photons, ces deux probabilités sont pratiquement identiques. La condition requise est que le temps typique d'observation soit nettement inférieur au temps moyen pour détecter un photon. Dans ce contexte, la probabilité de détecter plus d'un photon pendant le temps d'observation est négligeable par rapport à celle de détecter un seul photon sur cette même durée. Cette condition est

vérifiée dans nos expériences car le temps d'observation est de l'ordre de 10 ns alors que le temps moyen pour détecter un photon est de  $\sim 0.1$  ms.

Comme nous le verrons lors de la présentation des histogrammes de corrélation, la fonction d'auto-corrélation du second ordre s'obtient facilement en normalisant le nombre d'évènements de coïncidence enregistrés.

### 3.1.4 Résultats expérimentaux

#### 3.1.4.1 Auto-corrélation sous excitation pulsée

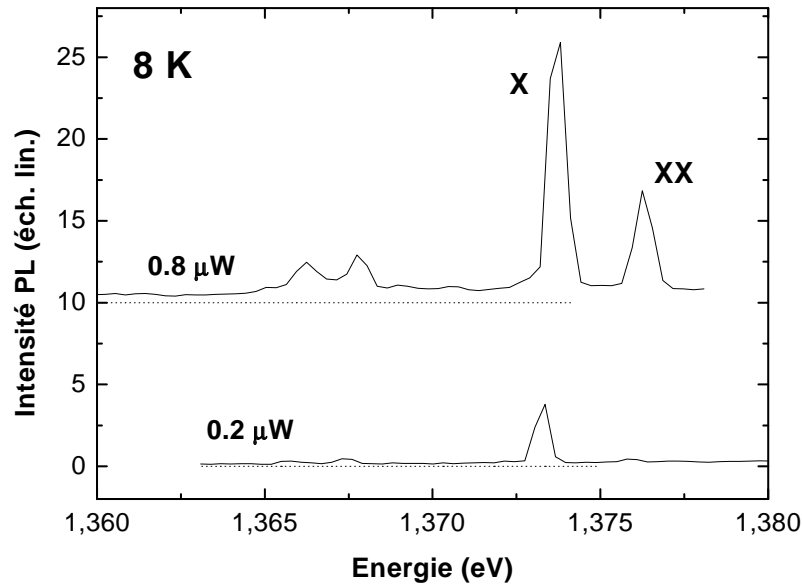


FIG. 3.4 – Spectres de la boîte quantique unique sur laquelle les expériences de corrélation ont été conduites, sous des puissances d'excitation de  $0.2 \mu\text{W}$  et  $0.8 \mu\text{W}$ . Les lignes en pointillé indiquent l'origine des ordonnées pour chaque spectre.

Le spectre de la boîte quantique que nous avons utilisée pour cette expérience est présenté figure 3.4. C'est un spectre typique de ceux présentés au chapitre 2 avec des raies X et XX facilement identifiables. Les spectres expérimentaux sont pour les expériences suivantes nettement moins bien résolus que ceux présentés dans le chapitre 2. En effet, le montage expérimental est différent car les expériences d'auto-corrélation nécessitent un flux minimal de photons pour pouvoir être réalisées. Nous avons ainsi utilisé un spectromètre à simple réseau, qui présente un coefficient de transmission supérieur aux longueurs d'onde étudiées, au prix d'une dégradation de la résolution spectrale (voir annexe

B).

L'excitation est faite de manière non résonante à 1.57 eV (790 nm), c'est à dire au-dessus de la barrière de GaAs. L'échantillon est refroidi à 8 K. Dans l'expérience réalisée, la puissance d'excitation est de  $0.8 \mu\text{W}$ , correspondant à  $0.7P_{sat}$ , où  $P_{sat}$  est la puissance de saturation de la raie X. Les spectromètres sont calés sur 1.3726 eV (903 nm), l'énergie associée à l'exciton. Le nombre de coups détectés par les photodiodes est de  $N_1 = 9000$  coups/s et  $N_2 = 6200$  coups/s. Celles-ci ont  $N_1^b = 150$  et  $N_2^b = 200$  coups/s de bruit noir. L'acquisition de l'histogramme a duré  $T_{int} = 55$  min sans fluctuation notable de l'intensité. L'histogramme des corrélations  $c(\tau)$  obtenu sous ces conditions est présenté figure 3.5. Le bruit de fond détecté par les photodiodes est ensuite retiré : par canal d'intégration, il faut retirer  $c_{bruit} = (N_1^b N_2^b + N_1^b N_2 + N_2^b N_1) T_{int} t_{canal}$ , où  $t_{canal}$  est la largeur temporelle du canal d'intégration. On obtient ainsi la normalisation suivante  $c_N(\tau) = c(\tau) / (N_1 N_2 T_{int} - c_{bruit})$ . Les aires des pics proprement normalisées donnent  $g^{(2)}(\tau)$  à ces instants. Ces nombres sont indiqués au-dessus des pics. L'intégration est prise de  $-4$  ns à  $+4$  ns.

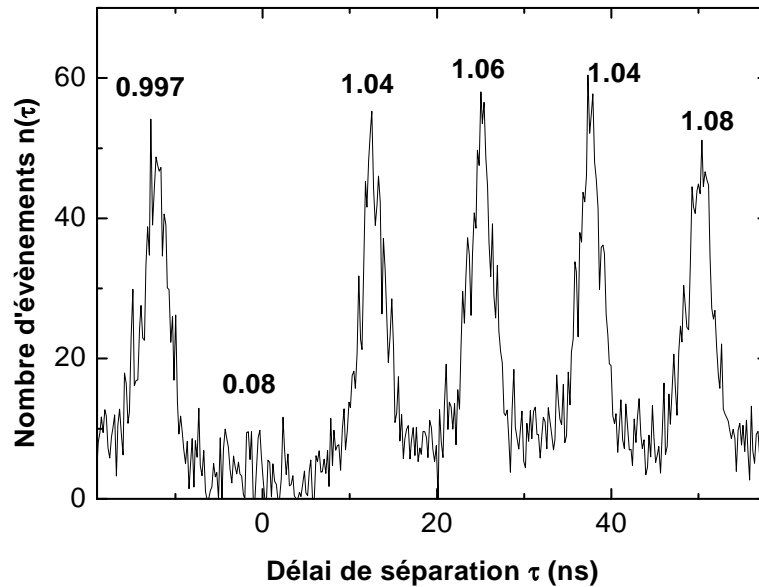


FIG. 3.5 – Histogramme de l'auto-corrélation de la raie X d'une boîte quantique unique. Le nombre d'évènements détectés est donné en fonction du délai de séparation  $\tau$  entre une détection sur l'entrée "start" et une autre sur l'entrée "stop". Les nombres au-dessus des pics sont les valeurs de  $g^{(2)}(\tau)$  à ces instants. Le pic central est absent, ce qui est une signature claire de l'émission de photons uniques.



On voit très clairement une forte atténuation du pic correspondant à  $\tau = 0$ .  $g^{(2)}(0)$  est sans ambiguïté inférieur à la valeur  $1/2$ , ce qui prouve bien que les photons proviennent d'un seul émetteur. La valeur du pic central donne  $g^{(2)}(0) \sim 0.08$ . Ceci signifie que la probabilité d'émettre plus de 2 photons est 12.5 fois plus faible que pour une source cohérente de même intensité. Cette valeur très faible obtenue pour  $g^{(2)}(0)$  permet déjà d'affirmer qu'une boîte quantique unique est une source à un photon. Ce dégroupement de photons s'observe pour différentes valeurs de la puissance laser incidente. Il est cependant difficile de réaliser l'expérience à faible puissance incidente car le taux de collection des photons devient alors trop faible. Au-delà de la puissance de saturation de la raie X, on observe toujours cet effet,  $g^{(2)}(0)$  a toutefois tendance à croître à cause de l'augmentation d'un signal de fond provenant de la couche de mouillage.

Ces résultats sont comparables à ceux mesurés par d'autres équipes [30, 31, 68] pour le même type de boîtes quantiques. Contrairement à [31], nous n'observons pas de phénomène de groupement de photons, attribué à un "clignotement" de la boîte quantique dû à des défauts voisins, pour les pics adjacents au pic central. Dans nos expériences les pics adjacents sont normalisés à 1 aux incertitudes de mesure près.

La largeur temporelle des pics de corrélation permet *a priori* d'accéder à la durée de vie radiative  $\tau_X$  de l'exciton. En prenant l'impulsion laser comme origine des temps (on néglige les temps de capture et de relaxation des porteurs dans la boîte quantique), la probabilité de détecter un photon à l'instant  $t$  est simplement donnée par  $P(t) = Ae^{-t/\tau_X}$ , où  $A$  est un coefficient de proportionnalité. Pour détecter un évènement de corrélation à l'instant  $\tau$  ( $\tau$  peut être aussi bien positif que négatif), il faut que lors de la première impulsion un photon soit émis à l'instant  $t$  avec une probabilité  $P(t)$  et que lors de la seconde impulsion un photon soit émis à  $t + \tau$  avec une probabilité  $P(t + \tau)$ . Il faut sommer l'ensemble des contributions sur  $t$  avec la condition que  $t + \tau$  soit positif. Le nombre d'évènements  $n(\tau)$  s'écrit donc :

$$n(\tau) = \int_0^{+\infty} Ae^{-t/\tau_X} Ae^{-(t+\tau)/\tau_X} H(t + \tau) dt \quad (3.10)$$

où  $H(t)$  est la fonction de Heavyside. En distinguant les cas où  $\tau$  est positif et négatif, on arrive facilement à l'expression :

$$n(\tau) \propto e^{-|\tau|/\tau_X} \quad (3.11)$$

La largeur temporelle à mi-hauteur des pics de corrélation est donc égale à  $2\ln(2)\tau_X$ . La largeur des pics de la figure 3.5, conduit ainsi à  $\tau_X \sim 2.9 \pm 0.2$  ns. Cette valeur est différente

du temps de vie mesuré pour cette boîte quantique en utilisant la méthode décrite dans la partie 2 (pratiquement le double). Le temps apparent donné par la largeur des pics peut donc être différent du temps de vie de l'état exciton mesuré par des méthodes directes. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce point un peu plus loin.

### 3.1.4.2 Auto-corrélation sous excitation continue

Pour cette même boîte quantique nous avons conduit la même expérience mais cette fois sous excitation continue. Le laser pompe est tout simplement abaissé en puissance et le verrouillage en mode pulsé supprimé. Nous avons vérifié que ce "continu" donne une fonction d'auto-corrélation du second ordre rigoureusement égale à 1 pour l'émission laser.

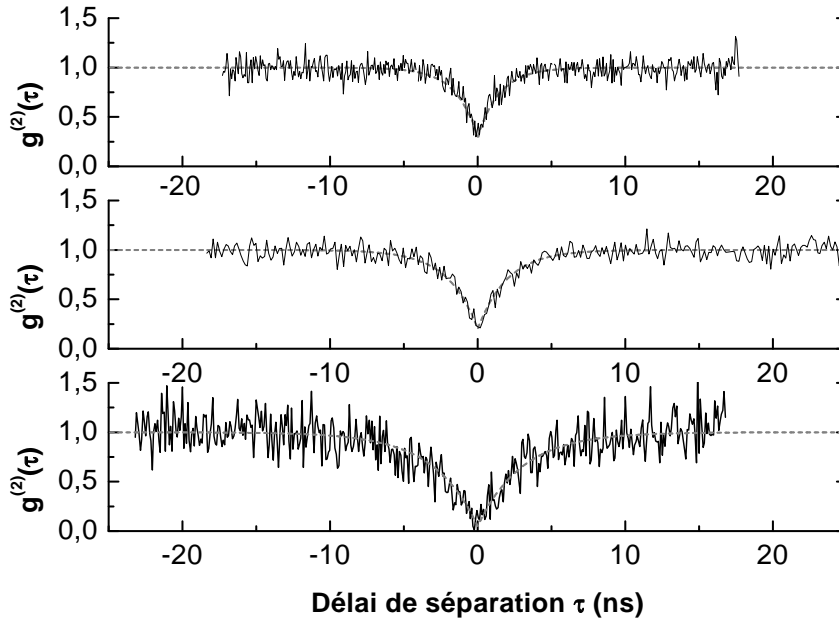


FIG. 3.6 – Histogrammes normalisés de l'auto-corrélation de la raie X pour des puissances d'excitation de  $0.4 \mu\text{W}$ ,  $1 \mu\text{W}$  et  $2.5 \mu\text{W}$ . Les spectres correspondant sont représentés figure 3.7. Les courbes en trait plein représentent la fonction  $g_b^{(2)}(\tau) = 1 + \rho^2(g^{(2)}(\tau) - 1)$ .  $\tau_X = 3 \text{ ns}$  pour les trois courbes, les autres paramètres sont respectivement  $g_b^{(2)}(0)$  : 0.05, 0.2, 0.3 et pour  $1/\tau_a$  : 0,  $1/2\tau_X$ ,  $1/\tau_X$ .

La figure 3.7 donne les spectres de la boîte quantique sous excitation continue pour les puissances laser incidentes auxquelles les expériences ont été réalisées. Par rapport à la puissance de saturation de l'exciton  $P_{sat}$ , ces trois puissances correspondent à  $0.16P_{sat}$ ,  $0.4P_{sat}$  et  $P_{sat}$ . Les histogrammes d'auto-corrélation sont présentés figure 3.6. Ceux-ci ont été corrigés du bruit de fond des photodiodes (toujours de 150 et 200 coups/s) et

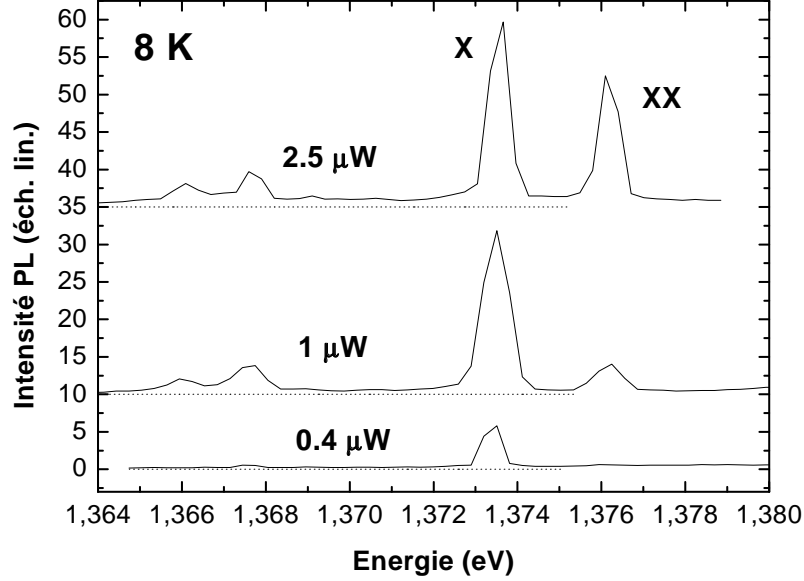


FIG. 3.7 – Spectres correspondant aux expériences de corrélation présentées figure 3.6. L'origine des ordonnées est indiquée en pointillé pour chaque courbe. Les puissances incidentes sont de  $0.4 \mu\text{W}$ ,  $1 \mu\text{W}$  et  $2.5 \mu\text{W}$ .

normalisés. La normalisation s'écrit cette fois-ci  $c_N(\tau) = c(\tau)/(N_1 N_2 t_{\text{canal}} T_{\text{int}} - c_{\text{bruit}})$ , où  $t_{\text{canal}}$  est la largeur temporelle d'un canal du compteur d'intervalles de temps (dans nos expériences  $t_{\text{canal}}$  est typiquement de  $0.1 \text{ ns}$ ).

Pour les trois courbes, là encore, le minimum à  $\tau = 0$  prouve bien le caractère non classique de notre émetteur : la boîte quantique émet à la longueur d'onde de la raie X des photons uniques indivisibles par la lame séparatrice. A cause d'un fond d'émission résiduel, provenant probablement de la couche de mouillage, ce minimum n'est pas tout à fait nul. Nous obtenons  $g^{(2)}(0) = 0.05$  pour  $P = 0.16 P_{\text{sat}}$ , ce qui est tout à fait comparable aux valeurs obtenues sous excitation pulsée. En augmentant  $\tau$ ,  $g^{(2)}(\tau)$  augmente de manière exponentielle jusqu'à saturer à la valeur 1, la statistique est alors Poissonienne aux temps longs. Cette expérience complémentaire de la précédente montre bien qu'une boîte quantique unique se comporte dans ces conditions comme un parfait émetteur à deux niveaux.

La largeur du creux de  $g^{(2)}(\tau)$ , sous condition de faible excitation, est reliée au temps de vie de l'émetteur. Elle est en principe égale à deux fois ce temps de vie. On mesure ainsi  $\tau_X = 3 \pm 0.2 \text{ ns}$ , valeur similaire de celle obtenue précédemment sous excitation

pulsée. En augmentant la puissance d'excitation, le creux de l'histogramme se referme et disparaît complètement pour des taux d'injection élevés. La dynamique est alors contrôlée par le temps de réexcitation de la boîte quantique et non plus par le temps de vie de l'exciton<sup>3</sup>.

L'allure de  $g^{(2)}(\tau)$  et son évolution avec la puissance d'excitation sont tout à fait compatibles avec un simple modèle à deux niveaux. Avec les notations déjà utilisées dans la partie 2.2.2.5 et en considérant que la boîte quantique ne peut contenir au plus qu'une paire électron-trou (cette approximation devient bien sûr fausse dès que l'on approche la saturation de la raie X, mais rend toutefois bien compte des phénomènes observés), le modèle s'écrit :

$$P(0) + P(1) = 1 \quad (3.12)$$

$$\frac{dP(1)}{dt} = -\frac{dP(0)}{dt} = \frac{P(0)}{\tau_a} - \frac{P(1)}{\tau_X} \quad (3.13)$$

Pour un système à deux niveaux, le théorème de régression quantique [96] permet d'identifier  $g^{(2)}(\tau)$  à  $P(1)[\tau]/P(1)[\tau \rightarrow \infty]$  avec la condition initiale  $P(1)[\tau = 0] = 0$ . C'est la probabilité d'occuper l'état excité sachant qu'à  $\tau = 0$  le système est dans l'état fondamental, divisée par la probabilité stationnaire d'être dans l'état excité. On arrive aisément à la solution suivante :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-|\tau|(\frac{1}{\tau_X} + \frac{1}{\tau_a})} \quad (3.14)$$

On retrouve bien qu'à faible excitation ( $\tau_X \ll \tau_a$ ) le temps de déclin de l'exponentielle doit s'identifier au temps de recombinaison de l'exciton  $\tau_X$ . Comme dans l'expérience sous excitation pulsée, ce temps mesuré (3 ns) se distingue du temps de vie mesuré par une méthode directe (1.5 ns). Le temps  $\tau_X$  utilisé dans notre modèle à deux niveaux n'est donc qu'un temps apparent. D'autres équipes [67] observent également un décalage entre la largeur du creux de  $g^{(2)}(\tau)$  et le temps de vie de l'émetteur. Nous tenterons d'expliquer cet état de fait dans la section 3.2.

Les trois courbes sont très bien approchées en utilisant comme seul paramètre le taux d'excitation  $1/\tau_a$  (on prend  $\tau_X = 3$  ns). Les valeurs trouvées pour  $1/\tau_a$  de 0,  $1/2\tau_X$  et  $1/\tau_X$  correspondent bien aux puissances d'excitation pour lesquelles ces mesures ont été réalisées. La non annulation de  $g^{(2)}(0)$  se comprend très bien dès que l'on prend en compte

---

<sup>3</sup>Théoriquement, la fonction d'auto-corrélation du second ordre présente sous forte excitation un creux à  $\tau = 0$  avec une largeur temporelle  $\tau_a$ . Mais ce temps est trop court pour pouvoir être mesuré expérimentalement et pour pouvoir observer le creux de corrélation.

la seule présence du bruit de fond observé sur les spectres, qui vient s'ajouter aux pics. Pour ce  $g^{(2)}(0)$ , on ajuste les courbes par la fonction d'auto-corrélation en présence de bruit  $g_b^{(2)}(\tau)$ .  $g_b^{(2)}(\tau) = 1 + \rho^2(g^{(2)}(\tau) - 1)$  où  $\rho = S/(S+B)$  est le rapport du signal  $S$  sur le bruit  $B$  en nombre de coups. Ainsi pour  $P = P_{sat}$ ,  $g_b^{(2)}(0) = 0.3$  ce qui correspond à  $\rho = 0.84$ . Le rapport mesuré sur le spectre donne  $\rho = 0.87$ , en accord avec la valeur de  $g_b^{(2)}(0)$ .

Les boîtes quantiques sur lesquelles ont été réalisées ces expériences sont très proches de la couche de mouillage. En utilisant des boîtes quantiques plus profondes, le rapport signal sur bruit serait encore meilleur et il est certainement possible d'améliorer encore la qualité du dégroupement de photons. En outre, la réjection de la lumière parasite pourrait être augmentée si l'on utilisait des filtres interférentiels très étroits au lieu de notre simple monochromateur. L'inconvénient des filtres interférentiels est bien sûr la rigidité de leur emploi qui oblige à travailler à une longueur d'onde bien définie<sup>4</sup>.

Ces résultats sont tout à fait comparables à ceux trouvés pour le même type de boîtes quantiques dans une matrice de GaAs [68, 84] ou bien intégrées dans des microdisques [67]. Notons que D. V. Regelman *et al.* [99] observent également un rétrécissement du creux de corrélation pour des puissances d'excitation croissantes, et à encore plus forte puissance un effet de groupement de photons ( $g^{(2)}(0) > 1$ ).

### 3.1.4.3 Auto-corrélation du signal associé au biexciton

Jusqu'à présent nous avons effectué les expériences d'auto-corrélation sur la raie exciton de la boîte quantique. Or nous avons vu dans la partie 2 que le signal associé au biexciton provient, *a priori*, lui aussi de l'émission d'un photon unique. Si tel est bien le cas, les boîtes quantiques pourraient alors être utilisées comme source de paires de photons (photon X et photon XX) ou bien encore, le photon associé au biexciton peut servir de "héraut" pour annoncer l'arrivée du photon unique associé à l'exciton. L'objet de cette section est ainsi d'étudier les propriétés statistiques de l'émission biexcitonique.

Les conditions expérimentales pour lesquelles les expériences ont été conduites sont semblables à celles décrites auparavant. Les spectromètres sont cette fois-ci calés sur la longueur d'onde associée à la raie XX ; 901.8 nm soit 1.3750 eV. Sous excitation pulsée, la puissance incidente est de 1.5  $\mu$ W correspondant à  $1.2P_{sat}$ . Le spectre de la boîte quantique dans ces conditions est présenté figure 3.8. L'acquisition a duré  $T_{int} = 52$  min

---

<sup>4</sup>Il est en fait possible de faire varier la longueur d'onde passante du filtre sur une faible plage en changeant l'angle d'inclinaison du filtre par rapport au signal incident.

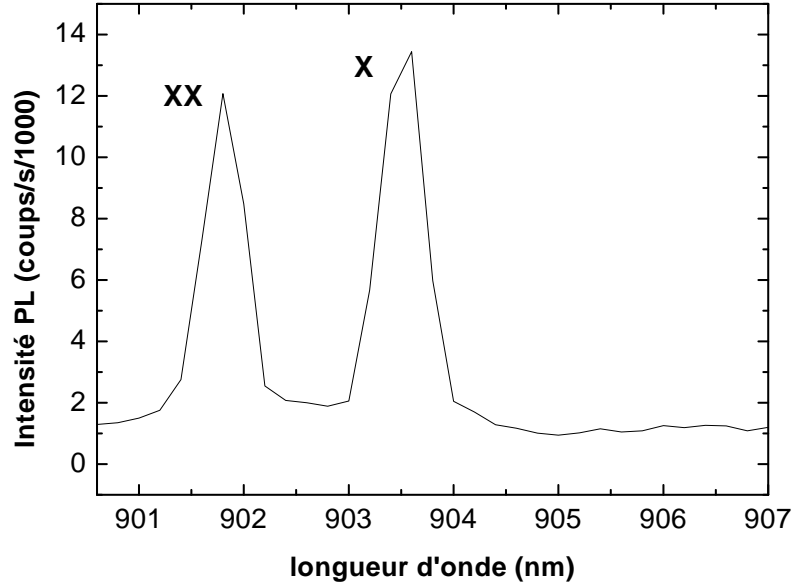


FIG. 3.8 – Spectre de la boîte quantique unique sous excitation pulsée pour une puissance incidente de  $1.5 \mu\text{W}$  correspondant à  $1.4P_{sat}$ . L'histogramme des corrélations associé à la raie XX est présenté figure 3.9.

avec  $N_1 = 7400$  coups/s et  $N_2 = 4500$  coups/s. L'histogramme des corrélations est présenté figure 3.9. Le pic central est nettement atténué et la valeur de  $g^{(2)}(0)$  correspondante est de 0.47. Comme cette valeur est inférieure à  $1/2$ , la raie XX est bien associée à un émetteur unique. La valeur de  $g^{(2)}(0)$  est supérieure à celle du  $g^{(2)}(0)$  de la raie X, car le rapport signal sur bruit est fortement dégradé puisque la puissance d'excitation est plus élevée. La valeur de  $g^{(2)}(0)$  est en assez bon accord avec le rapport signal sur bruit  $\rho = 0.78$  observé, puisqu'une telle valeur conduirait à  $g^{(2)}(0) = 0.39$ .

La largeur des pics adjacents est nettement plus faible que dans le cas de l'exciton, ce qui indique un temps de recombinaison du biexciton plus court. La mesure de cette largeur donne  $\tau_{XX} = 0.73$  ns, supérieure, comme dans le cas de l'état exciton, à la mesure de temps de vie réalisée directement ( $\sim 500$  ps).

Relativement peu de résultats d'auto-corrélation sur la raie XX ont été reportés dans la littérature. A cet égard, les expériences de R. M. Thompson *et al.* [84] conduisant à un  $g^{(2)}(0)$  très nettement inférieur à  $1/2$  méritent d'être citées. Dans cet article, cette équipe reporte également des expériences d'auto-corrélation sur une raie attribuée à un état exciton chargé, qui démontrent les mêmes propriétés de dégroupement de photons

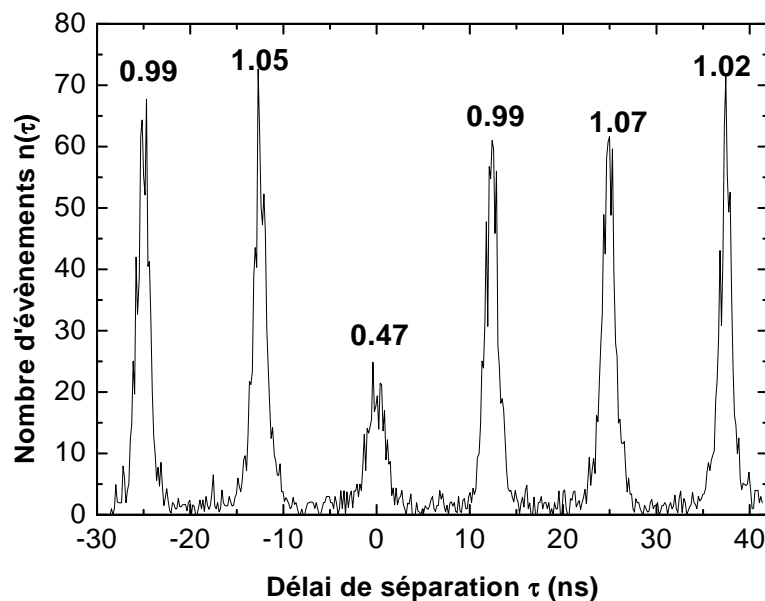


FIG. 3.9 – Histogramme de l'auto-corrélation de la raie XX, dont le spectre est présenté figure 3.8. Le nombre d'évènements détectés est donné en fonction du délai de séparation  $\tau$  entre une détection sur l'entrée "start" et une autre sur l'entrée "stop". Les nombres au-dessus des pics sont les valeurs de  $g^{(2)}(\tau)$  à ces instants. Le pic central est fortement atténué,  $g^{(2)}(0) < 0.5$  prouve que l'émission associée à l'état biexciton correspond bien à l'émission de photons uniques.

pour cet état de charge que pour l'état exciton neutre.

### 3.2 Cascade radiative de photons

Le protocole que nous avons utilisé dans la partie précédente pour générer des photons uniques peut être étendu pour générer des paires de photons.

Le même principe permet de générer des paires de photons, en sélectionnant spectralement cette fois-ci la raie X et la raie XX. L'objet de cette partie est de sonder ces cascades radiatives en menant des expériences de corrélations croisées. Nous confirmerons ainsi la possibilité d'émettre des paires de photons corrélés dans le temps. Au passage, nous aurons identifié chaque raie sans aucune ambiguïté. De plus, ces expériences nous renseignent sur la dynamique de recombinaison des états exciton et biexciton. Contrairement aux expériences de spectroscopie résolue en temps, l'expérience de corrélation permet d'identifier les évènements de corrélation entre un photon X et un photon XX émis pendant la même impulsion. Par conséquent ces expériences de corrélation entre différentes

raies sont beaucoup plus riches que les expériences de microphotoluminescence résolues en temps. Les résultats suivants sur les boîtes quantiques ont été publiés pour la première fois dans [100].

De même que pour les expériences d'auto-corrélation, les expériences de corrélation croisée sur des photons émis de manière séquentielle ont été réalisées sur les atomes en 1980 [25]. Ces observations ont permis par la suite la réalisation de paires de photons intriqués utilisés dans les expériences sur la non-localité des lois de la mécanique quantique et la violation des inégalités de Bell [26, 101]. La réalisation de paires de photons corrélés dans le temps a également conduit à des démonstrations sur la dualité onde-particule de la lumière [24]. Nous allons tout d'abord étudier les corrélations temporelles des photons émis par une boîte quantique, avant de discuter des perspectives pour émettre des états intriqués en utilisant une boîte quantique.

### 3.2.1 Expérience de corrélation entre raies X et XX sous excitation pulsée

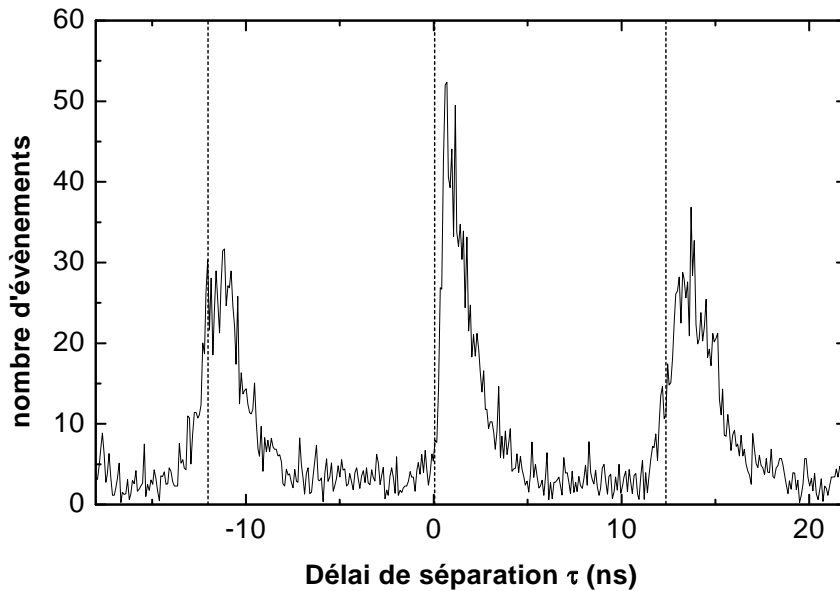


FIG. 3.10 – Histogramme de corrélation croisée de la raie X et de de la raie XX sous excitation pulsée. Le délai de séparation  $\tau$  est positif quand le photon XX arrive avant le photon X. Les curseurs en pointillé indiquent la période de répétition du laser (12.2 ns). Le front de montée vertical à  $\tau = 0$  prouve que les photons arrivent dans un ordre bien défini.



Nous présentons tout d'abord les expériences de corrélation entre photons X et XX sous excitation pulsée. Les résultats sont en effet plus simples à interpréter. Le montage expérimental est identique à celui présenté pour les expériences d'auto-corrélation (voir l'annexe B). Le spectre du *mesa* étudié est celui présenté figures 3.4 et 3.7. Le premier spectromètre sélectionne la raie X de la boîte quantique (à 1.3726 eV) et le second la raie XX (à 1.375 eV). L'entrée "start" de l'analyseur est reliée à la photodiode 1 détectant le signal associé au biexciton, l'entrée "stop" à la photodiode 2, qui détecte les photons X. La figure 3.10 présente l'histogramme de corrélation obtenu après une acquisition de  $T = 32$  min et avec  $N_1 = 5600$  coups/s et  $N_2 = 10000$  coups/s (mêmes notations que dans les expériences d'auto-corrélation). L'expérience est réalisée pour une puissance d'excitation de  $1 \mu\text{W}$ , ce qui correspond à  $0.6P_{sat}$ . L'histogramme des événements de corrélation s'identifie après normalisation, et toujours sous faible flux, à la fonction de corrélation du second ordre  $g_{X,XX}^{(2)}(\tau)$  définie de la manière suivante :

$$g_{X,XX}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I_{XX}(t)I_X(t+\tau) : \rangle}{\langle I_{XX}(t) \rangle \langle I_X(t) \rangle} \quad (3.15)$$

$I_X$  et  $I_{XX}$  se référant respectivement aux intensités des raies X et XX. Enfin, le zéro temporel ( $\tau = 0$ ) peut être obtenu sans ambiguïté en réglant simplement les monochromateurs sur la fréquence du laser et en enregistrant ainsi l'arrivée des impulsions laser.

Le pic de corrélation central à  $\tau = 0$  (voir figure 3.10) se distingue très nettement des autres pics. En particulier, il présente un front de montée vertical et a une intensité maximale supérieure, comparativement aux pics voisins. C'est tout d'abord la preuve que les deux raies proviennent bien de la même boîte quantique. Dans le cas contraire, les pics seraient tous symétriques et le pic central aurait la même intensité que ses voisins (voir partie 3.1), car les deux émetteurs seraient totalement indépendants.

Le pic central provient d'événements de corrélation entre un premier photon XX et le photon X émis lors de la même impulsion laser. Pour  $\tau < 0$  le signal tombe brutalement au niveau des coïncidences accidentelles dues aux coups de bruit des photodiodes. C'est la preuve que le photon associé à l'exciton est bien toujours émis après celui associé au biexciton. Ceci permet de confirmer sans aucune ambiguïté l'identification des raies X et XX. C'est aussi la démonstration que la probabilité d'émettre une deuxième paire de photons dans la même impulsion laser est nulle. À  $\tau = 0$ , l'émission d'un photon XX projette la boîte quantique dans un état excitonique radiant. La probabilité de détecter juste après un photon X devient donc grande.

Ce pic de corrélation présente un déclin monoexponentiel de constante de temps  $T = 1.5 \pm 0.05$  ns. Ceci est dû au fait qu'à  $\tau = 0$  l'état de la boîte quantique est exactement préparé dans l'état exciton radiant, car il résulte de la recombinaison d'une paire électron-trou de l'état biexciton. Ce temps de déclin s'identifie donc au temps de vie de l'exciton. La valeur de 1.5 ns est cette fois-ci bien en accord avec le temps de vie obtenu par mesure directe. Remarquons que ces expériences de corrélation de photons peuvent être réalisées même si l'excitation du système est lente. La durée n'est mesurée qu'à partir de l'instant où le système est préparé dans l'état exciton; peu importe les mécanismes de relaxation et de diffusion des porteurs dans la barrière de GaAs qui ont précédé cet instant.

Ainsi, cette expérience et celle de spectroscopie résolue en temps donnent une mesure directe du temps de vie de l'exciton, sur laquelle nous pouvons nous appuyer. Dans le cas des expériences d'auto-corrélation, présentées dans les sections précédentes, le temps de vie apparent ne s'identifie pas à la durée de vie radiative. Ceci peut s'expliquer si à partir de l'état fondamental il existe un état autre que l'état exciton, et en compétition avec lui, dans lequel le système peut évoluer. Ce phénomène a pour conséquence de rallonger le temps de vie apparent de l'état exciton. C'est en particulier le cas s'il existe un état exciton chargé. Sur les spectres d'émission de la boîte quantique des raies secondaires sont présentes à plus basse énergie que les raies X et XX (voir figure 3.14). Une des raies, d'intensité nettement plus faible que les raies X et XX, présente une dépendance polynomiale de degré  $\sim 1.5$  avec la puissance d'excitation. Il est donc tout à fait envisageable qu'une telle raie soit associée à un état exciton chargé. Ceci expliquerait le temps de vie apparent plus long mesuré dans les expériences d'auto-corrélation. Nous aurons l'occasion d'y revenir dans la section 3.3.

Cependant cet effet fera dans le futur l'objet d'études complémentaires pour valider cette interprétation. Une modélisation en utilisant des "équations-bilans" du même type que 2.9 est envisageable.

Les autres pics sont au contraire constitués d'évènements de corrélation entre photons XX et photons X émis pour des impulsions laser différentes. Ces pics conservent une asymétrie similaire à celle du pic central mais n'ont pas de front de montée aussi bien défini et sont plus larges car les deux photons sont émis de manière indépendante. Soit  $t_{X_j}$  l'instant où le photon X est émis pour l'impulsion  $j$  et  $t_{XX_i}$  l'instant où le photon XX est émis pour l'impulsion  $i$ . Le délai de séparation entre ces deux évènements est  $t_{X_j} - t_{XX_i}$ . L'évènement de corrélation contribue au pic  $(i - j)$ . Ce délai de séparation peut aussi

s'exprimer de la manière suivante :

$$t_{X_j} - t_{XX_i} = (j - i)T_{las} + \Delta t_{X_j} + \Delta t_{XX_j} - \Delta t_{XX_i} \quad (3.16)$$

$\Delta t_{XX_i}$  représente le temps écoulé entre l'émission du photon XX et l'impulsion laser (temps de relaxation et temps de vie du biexciton).  $\Delta t_{X_j}$  représente le temps écoulé entre l'émission du photon XX et du photon X, émis tous les deux lors de l'impulsion  $j$ . La période du laser  $T_{las}$  étant une constante, la largeur du pic  $(j - i)$  est donnée par les variations des trois derniers termes de l'équation 3.16. Si  $i = j$  seul le terme  $\Delta t_{X_j}$  subsiste dans l'équation 3.16, et on retrouve bien que l'élargissement du pic central est dû au temps de vie de l'exciton. Pour  $i \neq j$ , le pic  $(i - j)$  a un élargissement supplémentaire dû aux contributions des termes biexciton de l'équation 3.16, si bien que le temps de montée des pics reflète essentiellement le temps de vie du biexciton. Cet élargissement est identique  $\forall i \neq j$ .

Ces observations expérimentales confirment de façon certaine l'identification des raies X et XX, associées respectivement aux états exciton et biexciton. Elles démontrent également l'émission de paires de photons corrélés dans le temps : d'abord le photon XX puis après le photon X. Notons que ce protocole d'excitation, contrairement à la fluorescence paramétrique de photons [48], permet de maîtriser l'émission de paires de photons, les paires sont émises juste après les impulsions laser. De plus, le taux d'émission des paires de photons peut être rendu très proche de 1, il suffit d'envoyer une impulsion laser suffisamment intense pour créer au moins deux paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique.

### 3.2.2 Expérience de corrélation entre raies X et XX sous excitation continue

Nous avons recherché les signatures complémentaires de cette corrélation de photons en réalisant cette expérience sous excitation continue. Excepté le mode d'excitation, les conditions expérimentales sont identiques. La puissance incidente est de  $0.5 \mu\text{W}$  ce qui correspond à  $0.5P_{sat}$ . L'acquisition a duré 330 min avec  $N_1 = 6300$  coups/s (associé au biexciton) et  $N_2 = 26000$  coups/s (associé à l'exciton). Les "coups noirs" des photodiodes sont retirés de l'histogramme qui est alors normalisé pour donner  $g_{X,XX}^{(2)}(\tau)$  (même méthode que dans la partie 3.1.4.2).

Contrairement aux expériences d'auto-corrélation qui présentent un aspect symétrique

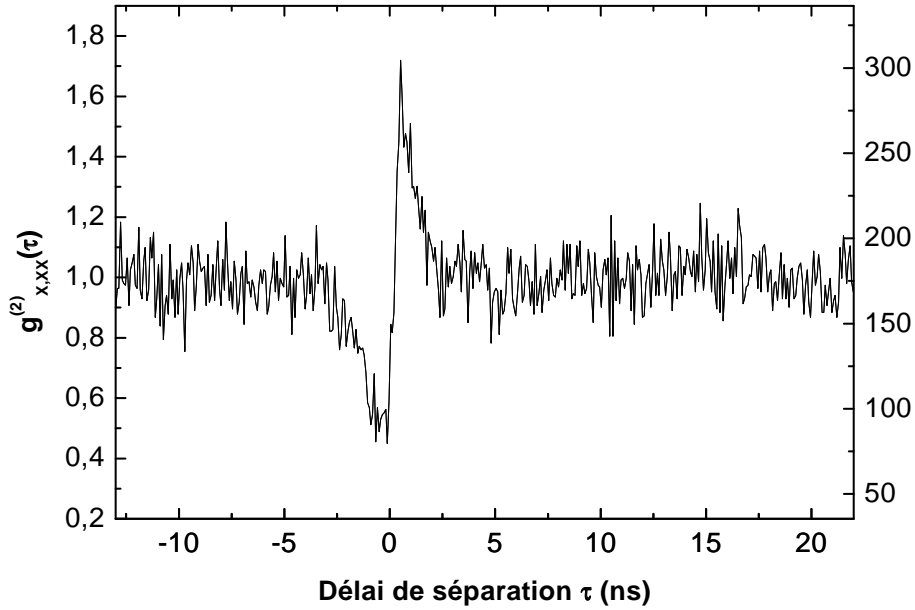


FIG. 3.11 – Histogramme de corrélation croisée de la raie X et de la raie XX sous excitation continue. Le délai de séparation  $\tau$  est positif quand le photon XX arrive avant le photon X. L'asymétrie du signal prouve que lorsqu'un photon XX est émis, on observe un photon X juste après, et jamais juste avant.

par rapport à  $\tau = 0$ , l'histogramme des corrélations croisées présente un comportement très différent pour les délais de séparation  $\tau$  positifs et négatifs. Aux temps positifs,  $g_{X,XX}^{(2)}(\tau)$  croît brusquement jusqu'à la valeur 1.6 pour décroître à  $g_{X,XX}^{(2)} = 1$ . Cette valeur de  $g_{X,XX}^{(2)}$  supérieure à 1 montre que les émissions des photons associés aux états biexciton et exciton sont fortement corrélées.

Contrairement à l'expérience réalisée sous excitation pulsée, l'arrivée des photons XX et X n'est pas commandée par une impulsion laser. Les photons peuvent arriver à n'importe quel instant. Comme démontré dans les expériences sur les atomes [25], le pic de corrélation à  $\tau = 0$  de l'expérience réalisée sous excitation continue prouve que si on détecte un photon XX alors on observe un photon X juste après. La partie  $\tau > 0$  est essentiellement liée au temps de vie radiatif de l'exciton. La probabilité d'émission du photon X décroît de manière exponentielle et le temps de déclin s'identifie exactement au temps de vie de l'exciton à faible excitation (1.5 ns), comme dans l'expérience sous excitation pulsée. La valeur limite 1 pour  $g_{X,XX}^{(2)}(\tau)$  correspond aux coïncidences aléatoires entre photons provenant d'états XX et X quelconques, émis non consécutivement.

Pour des délais de séparation négatifs, la fonction de corrélation croisée chute à

0.44 pour  $\tau = 0$  puis augmente lentement jusqu'à 1 quand  $\tau$  prend des valeurs de plus en plus négatives. Ce comportement de dégroupement de photons s'interprète très bien par une émission séquentielle de photons : quand le deuxième photon (X) de la cascade est détecté, le système est revenu dans son état fondamental, la probabilité de détecter un photon XX chute à 0 jusqu'à ce que notre système à trois niveaux soit à nouveau excité. Ce creux de corrélation montre que juste avant la détection d'un photon XX on n'observe jamais de photon X.

La valeur non nulle de  $g_{X,XX}^{(2)}(0)$  obtenue aux temps négatifs provient majoritairement du signal de fond, associé à la couche de mouillage, que l'on observe sur le spectre des boîtes quantiques. Pour ces conditions d'excitation, les rapports signal ( $S$ ) sur bruit ( $B$ ) des raies X et XX sont égaux à  $\rho_X = S_X/(S_X + B_X) = 0.89$  et  $\rho_{XX} = 0.72$ . Ce qui donne une valeur attendue pour  $g_{X,XX}^{(2)}(0)$  de  $1 - \rho_X \rho_{XX} = 0.36$ . Cette valeur est légèrement inférieure à celle mesurée (0.44). La différence provient peut-être simplement du fait que le nombre de canaux de l'analyseur est fini, ce qui introduit un moyennage supplémentaire de la fonction d'auto-corrélation.

Ce comportement de dégroupement de photons, bien que prédit théoriquement [102, 103], n'a jamais été observé dans les expériences avec des jets atomiques [25]. Le processus pour exciter la cascade atomique a une si faible efficacité quantique qu'elle empêche d'observer cet effet, qui se retrouve masqué par le signal des coïncidences accidentelles provenant majoritairement de photons à la fréquence du laser exciteur [104]. Autrement dit, la probabilité de réexciter le même atome juste après la cascade atomique est beaucoup trop faible. Notons que notre processus d'excitation non résonant est beaucoup plus efficace, ce qui permet de rejeter beaucoup plus facilement les photons émis à la fréquence du laser. Ce processus permet en effet de bien découpler les fonctions excitation et émission de la boîte quantique, en bénéficiant du continuum de la barrière de GaAs et du transfert efficace d'excitation de la barrière à la boîte quantique.

### 3.2.2.1 Dépendance en puissance

La largeur à  $\tau < 0$  du creux de dégroupement de photons est reliée en grande partie au temps de réexcitation de la cascade atomique alors que la partie  $\tau > 0$  est essentiellement contrôlée par le temps de vie de l'exciton. Ces comportements sont ainsi liés à des effets physiques très différents. En jouant avec la puissance d'excitation, on s'attend à révéler ces deux natures. En particulier, la partie à  $\tau < 0$  devrait être plus

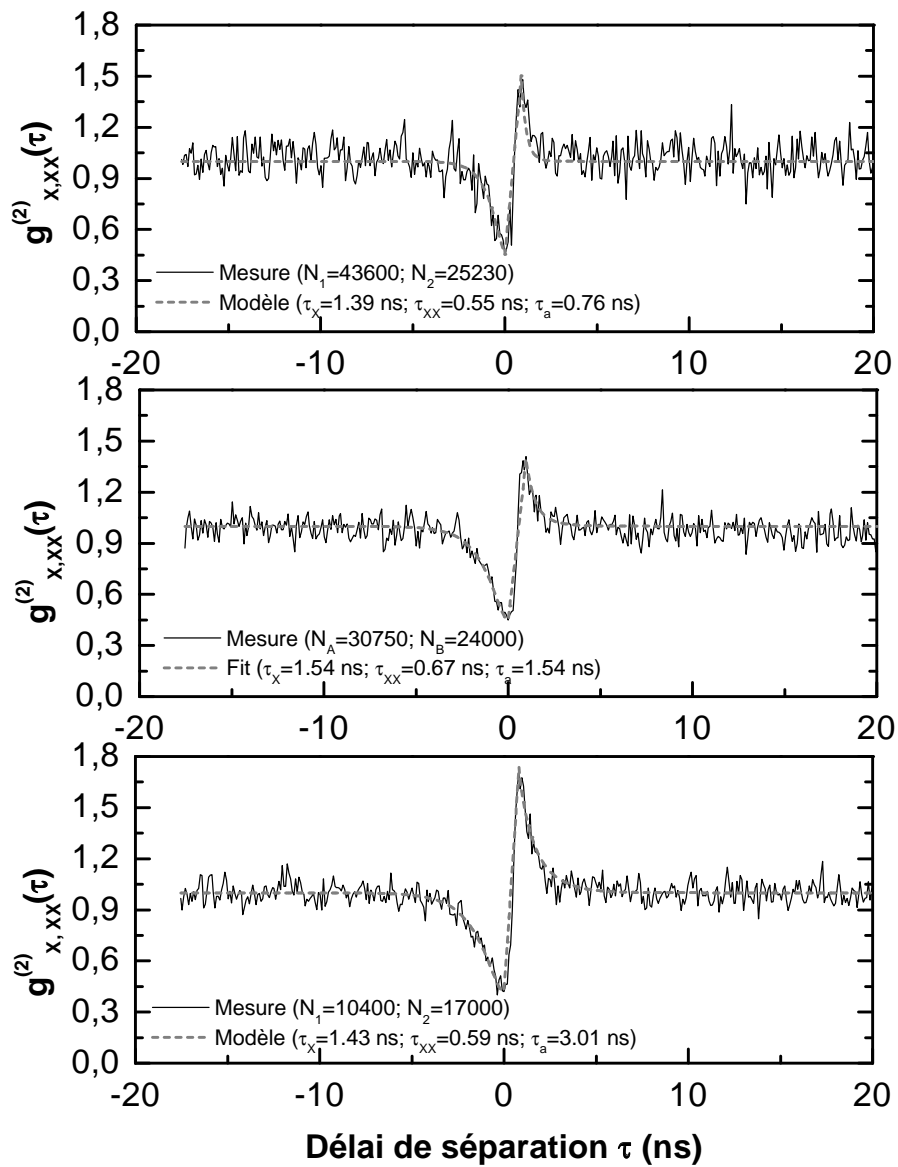


FIG. 3.12 – Histogrammes de corrélation croisée de la raie X et de la raie XX sous excitation continue, pour trois puissances incidentes différentes. Les puissances correspondantes sont, de bas en haut, de  $0.5P_{sat}$ ,  $P_{sat}$  et  $1.5P_{sat}$ . Les courbes en trait plein sont les résultats du modèle 3.17 obtenus en faisant varier les paramètres  $\tau_X$ ,  $\tau_{XX}$  et  $\tau_a$ . Ce modèle tient compte des coïncidences accidentelles causées par le bruit de fond.

sensible à la puissance d'excitation que la partie  $\tau > 0$ .

Ces expériences de corrélations croisées ont ainsi été réalisées pour différentes puissances incidentes (voir figure 3.12) à  $0.5P_{sat}$ ,  $P_{sat}$  et  $1.5P_{sat}$ . Quand la puissance incidente augmente, on constate que le creux de la fonction de corrélation aux  $\tau$  négatifs se rétrécit et que le pic de corrélation aux  $\tau$  positifs diminue en intensité. Comme pour les fonctions d'auto-corrélation, la largeur du creux est fonction du temps de réexcitation du système et diminue donc quand la puissance augmente. Le pic de corrélation a tendance à s'atténuer à forte excitation car la probabilité de réexciter le système dans l'état biexciton à partir de l'état exciton est non négligeable. A la limite, le pic de corrélation disparaît avec la raie associée à l'état exciton. Notons toutefois que le temps de déclin du pic de corrélation ne semble pas beaucoup évoluer avec la puissance d'excitation. Enfin l'augmentation du rapport signal sur bruit cause une réduction de la profondeur du creux de corrélation.

### 3.2.2.2 Description par un modèle à trois niveaux

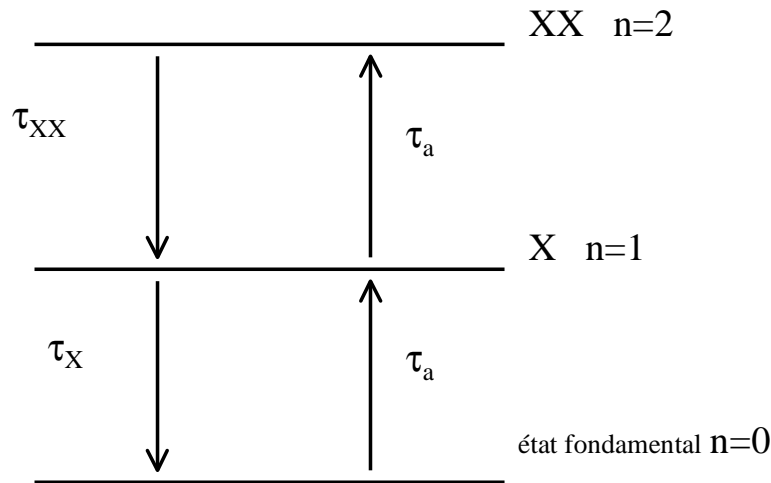


FIG. 3.13 – Schéma de principe du modèle à trois niveaux pour la description des courbes de corrélations croisées. Les flèches indiquent les différentes transitions possibles entre les niveaux, elles sont accompagnées de la constante de temps associée à la transition.

Ces courbes de corrélations croisées peuvent être ajustées par les solutions d'un modèle à trois niveaux, dont le schéma de principe est présenté figure 3.13. Nous supposons ainsi que la probabilité d'injecter plus de deux paires électron-trou est suffisamment faible pour modéliser notre boîte quantique comme un système à trois niveaux. Nous faisons

aussi l'hypothèse que les porteurs arrivent uniquement par paires, que l'arrivée de ces paires électron-trou est aléatoire et ne dépend pas en particulier de l'état de charge de la boîte quantique. Avec les mêmes notations utilisées qu'au chapitre 2, les probabilités de présence  $P(n)$  de  $n$  paires électron-trou à l'intérieur de la boîte quantique sont données par les équations 2.9 tronquées à partir de  $n = 3$  :

$$\begin{cases} \frac{dP(0)}{dt} = \frac{P(1)}{\tau_X} - \frac{P(0)}{\tau_a} \\ \frac{dP(1)}{dt} = \frac{P(0)}{\tau_a} + \frac{P(2)}{\tau_{XX}} - P(1) \left( \frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_X} \right) \\ \frac{dP(2)}{dt} = \frac{P(1)}{\tau_a} - \frac{P(2)}{\tau_{XX}} \end{cases} \quad (3.17)$$

où  $\tau_X$  et  $\tau_{XX}$  sont les temps de vie des niveaux exciton et biexciton, alors que  $\tau_a$  est le temps caractéristique d'arrivée d'une paire électron-trou, inversement proportionnel à la puissance incidente  $P$ . Ce système d'équations a pour solution générale :

$$P(n)[t] = A_n + B_n e^{\lambda_+ t} + C_n e^{\lambda_- t} \quad (3.18)$$

$$\text{où } \lambda_{\pm} = -\frac{1}{2} \left( \frac{2}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_X} + \frac{1}{\tau_{XX}} \mp \left( \left( \frac{1}{\tau_{XX}} - \frac{1}{\tau_X} \right)^2 + \frac{4}{\tau_a \tau_X} \right)^{1/2} \right) \quad (3.19)$$

avec la condition suivante :

$$\forall t \quad P(0)[t] + P(1)[t] + P(2)[t] = 1 \quad (3.20)$$

Pour  $t > 0$ , à l'instant initial le système est préparé dans l'état X :  $P(1)[0] = 1$ . La fonction de corrélation croisée à l'instant  $t$  s'exprime comme le quotient de la probabilité conditionnelle d'être dans l'état X à  $t$  ( $P(1)[t]$ ) sachant que  $P(1)[0] = 1$ , par la probabilité stationnaire d'être dans l'état exciton :

$$g_{X,XX}^{(2)}(t) = \frac{P(1)[t | P(1)[0] = 1]}{P(1)[+\infty]} \quad (3.21)$$

Dans ce contexte, les paramètres  $A_n$ ,  $B_n$  et  $C_n$  prennent les valeurs suivantes :

$$A_0 = \frac{1}{1 + \frac{\tau_X}{\tau_a} + \frac{\tau_X \tau_{XX}}{\tau_a^2}} \quad A_1 = \frac{\tau_X}{\tau_a} A_0 \quad A_2 = \frac{\tau_X \tau_{XX}}{\tau_a^2} A_0 \quad (3.22)$$

$$B_0 = \frac{1/\tau_X + \lambda_- A_0}{\lambda_+ - \lambda_-} \quad B_1 = \tau_X B_0 \left( \lambda_+ + \frac{1}{\tau_a} \right) \quad B_2 = -B_0 - B_1 \quad (3.23)$$

$$C_0 = -A_0 - B_0 \quad C_1 = 1 - A_1 - B_1 \quad C_2 = -A_2 - B_2 \quad (3.24)$$

Pour  $t < 0$ , à l'instant initial le système est préparé dans l'état fondamental ( $P(0)[0] = 1$ ) car on vient d'émettre un photon associé à l'exciton. On attend alors l'émission d'un



photon associé au biexciton. La fonction de corrélation croisée à l'instant  $t$  s'exprime alors comme le quotient de la probabilité conditionnelle d'être dans l'état XX à  $t$  sachant que  $P(0)[0] = 1$ , par la probabilité stationnaire d'être dans l'état XX :

$$g_{X,XX}^{(2)}(t) = \frac{P(2)[t|P(0)[0] = 1]}{P(2)[+\infty]} \quad (3.25)$$

Avec cette condition initiale, les paramètres  $A_n$ ,  $B_n$  et  $C_n$  prennent les valeurs suivantes :

$$A_0 = \frac{1}{1 + \frac{\tau_X}{\tau_a} + \frac{\tau_X \tau_{XX}}{\tau_a^2}} \quad A_1 = \frac{\tau_X}{\tau_a} A_0 \quad A_2 = \frac{\tau_X \tau_{XX}}{\tau_a^2} A_0 \quad (3.26)$$

$$B_0 = \frac{-1/\tau_a + \lambda_-(A_0 - 1)}{\lambda_+ - \lambda_-} \quad B_1 = \tau_X B_0 \left( \lambda_+ + \frac{1}{\tau_a} \right) \quad B_2 = -B_0 - B_1 \quad (3.27)$$

$$C_0 = 1 - A_0 - B_0 \quad C_1 = -A_1 - B_1 \quad C_2 = -A_2 - B_2 \quad (3.28)$$

En régime de basse excitation, c'est à dire lorsque  $\tau_X \ll \tau_a$ ,  $g_{X,XX}^{(2)}(t)$  s'exprime de façon simple et permet de rendre compte qualitativement des comportements observés. On obtient ainsi pour  $t < 0$  :

$$g_{X,XX}^{(2)}(t) = \left( 1 + \frac{1}{\tau_X - \tau_{XX}} (\tau_{XX} e^{-t/\tau_{XX}} - \tau_X e^{-t/\tau_X}) \right) \quad (3.29)$$

et pour  $t > 0$  :

$$g_{X,XX}^{(2)}(t) = 1 + \frac{\tau_a}{\tau_X} e^{-t/\tau_X} \quad (3.30)$$

Ces formules ne rendent toutefois pas compte du rétrécissement du creux à  $t < 0$  quand la puissance incidente augmente. Pour décrire quantitativement le comportement des courbes en puissance il faut utiliser les expressions plus générales. Les deux séries d'équations, de 3.22 à 3.28, permettent de calculer  $g_{X,XX}^{(2)}(t)$  pour  $t > 0$  et  $t < 0$ . Comme dans la partie 3.1.4.1, on tient compte du niveau de bruit en introduisant la fonction  $g_b^{(2)}(t)$  et  $\rho$  le rapport signal sur bruit :

$$g_b^{(2)}(t) = 1 + \rho^2 (g_{X,XX}^{(2)}(t) - 1) \quad (3.31)$$

Les courbes en trait plein de la figure 3.12 sont obtenues en optimisant les paramètres  $\tau_X$ ,  $\tau_{XX}$  et  $\tau_a$ . Les valeurs obtenues sont indiquées sur chaque figure. Les temps de vie ainsi obtenus pour l'exciton, de l'ordre de 1.4 ns, sont en bon accord avec la mesure directe du temps de vie (1.5 ns). Il en est de même pour le biexciton, dont la mesure directe du temps de vie fournit 0.5 ns, à comparer aux 0.6 ns obtenues par notre modèle. Les temps d'excitation  $\tau_a$  obtenus sont aussi en accord avec les puissances auxquelles ces expériences ont été réalisées. Ainsi, la figure du bas a été obtenue pour une puissance de  $0.5P_{sat}$ <sup>5</sup>, donc

<sup>5</sup>Rappelons que  $P_{sat}$  réfère à la puissance de saturation de la raie associée à l'exciton.

le temps d'excitation est théoriquement de  $2\tau_X$ , soit 3 ns ce qui tout à fait en accord avec la valeur de 3.01 ns obtenue par le jeu d'équations 3.17. Pour les deux autres figures les valeurs théoriques attendues pour  $\tau_a$  sont de 1.5 ns et 1 ns, à comparer avec les valeurs de 1.54 ns et 0.76 ns obtenues par notre modèle. Les écarts peuvent provenir du fait que notre modèle à trois niveaux est une approximation d'un modèle plus complexe avec des niveaux supérieurs, qui ont une probabilité d'occupation non négligeable à forte excitation. Enfin les valeurs de  $g_{X,XX}^{(2)}(0)$  mesurées pour  $t < 0$  sont en bon accord avec le rapport signal sur bruit observé. Les valeurs tirées de 3.31 sont, de bas en haut, de 0.76, 0.74 et 0.73 en bon accord avec les niveaux de bruit de l'ordre de 20% observés. En retirant les coïncidences accidentelles causées par le bruit de fond, on obtient un  $g_{X,XX}^{(2)}(0)$  nul, ce qui prouve bien que la probabilité d'observer un photon X juste avant la détection d'un photon XX est rigoureusement nulle.

Ces observations expérimentales constituent une preuve de l'émission séquentielle des photons à l'intérieur d'une boîte quantique unique. C'est aussi une démonstration de l'émission de paires de photons corrélés dans le temps. Le creux aux temps négatifs, descendant à 0 lorsque les coïncidences accidentelles sont retirées, prouve qu'à chaque impulsion on n'émet qu'une seule paire de photons.

Notre système présente l'avantage majeur d'avoir une bonne efficacité quantique de production de paires de photons, comparé à d'autres sources, comme les cascades atomiques ou la fluorescence paramétrique également utilisée pour la cryptographie quantique [57, 48]. Dans les cascades atomiques le processus d'excitation a un rendement très faible car c'est la section efficace d'absorption de l'atome qui assure l'excitation. Ce faible rendement est la raison essentielle pour laquelle le creux de dégroupement de photons pour  $t < 0$  n'a jamais été observé. Le développement de pièges optiques microscopiques capables de piéger un atome unique pourrait cependant changer radicalement cette problématique [105, 106].

La génération de paires de photons par fluorescence paramétrique a un rendement plus élevé. Il a récemment été observé un taux de conversion de photons pompés en paires de photons de l'ordre de  $10^{-6}$  [107]. En plus la probabilité d'émettre deux paires de photons ou plus n'est pas négligeable, puisque la distribution des paires de photons paramétriques est poissonnienne [48].

Avec les boîtes quantiques, le processus d'excitation non-résonant permet de profiter de l'absorption dans le matériau environnant, suivie par un piégeage efficace des paires

électron-trou par la boîte quantique. Nous estimons ainsi que des impulsions laser contenant  $10^6$  photons (à peu près 5 fois plus que dans les expériences présentées précédemment) conduisent à l'émission d'une paire de photons par impulsion. C'est équivalent au processus paramétrique, et le pompage de notre source n'est pas optimisé (adaptation de la structure à la longueur d'onde de pompe, diamètre du faisceau, ...). Une faible puissance de pompage nous permettrait facilement de pomper notre source à photons uniques avec une structure VCSEL.

De plus la probabilité d'émettre plus d'une paire à la fois est négligeable. Cependant le processus paramétrique permet de collecter toutes les paires de photons émises alors que notre rendement de collection est faible pour des boîtes quantiques dans des *mesas*. La collection des photons émis est donc un enjeu tout à fait crucial. Elle peut notamment être améliorée en incluant les boîtes quantiques dans des micropiliers de manière à ce que les raies X et XX soient toutes les deux en résonance avec le mode de cavité. Notons enfin, que l'émission de paires de photons constitue un avantage supplémentaire des boîtes quantiques par rapport aux autres émetteurs utilisés comme sources solides de photons uniques.

### 3.3 Contribution à l'étude de raies nettement moins identifiables

Pour certaines boîtes quantiques, les spectres de photoluminescence sont plus compliqués, avec des raies non clairement identifiées. La figure 3.14 présente une boîte quantique où les raies X et XX sont clairement identifiées à la fois par leur dépendance en puissance et les expériences de corrélations croisées. Par contre la raie située à 7.5 meV plus en bas en énergie que la raie X n'est pas clairement identifiable par sa dépendance en puissance. Etant donné son décalage en énergie par rapport à la raie X, ce pourrait être soit une raie provenant d'une autre boîte quantique, soit un exciton chargé  $X^+$  (un électron et deux trous) ou  $X^-$  (deux électrons et un trou), soit un état multiexcitonique  $nX$  avec  $n \geq 3$ . Pour tenter d'identifier cette raie, nous avons conduit des expériences de corrélations croisées entre cette raie et les raies X et XX.

**Corrélation entre la raie inconnue et la raie XX** L'histogramme de corrélation entre la raie inconnue et la raie XX est présenté figure 3.15. La puissance incidente est

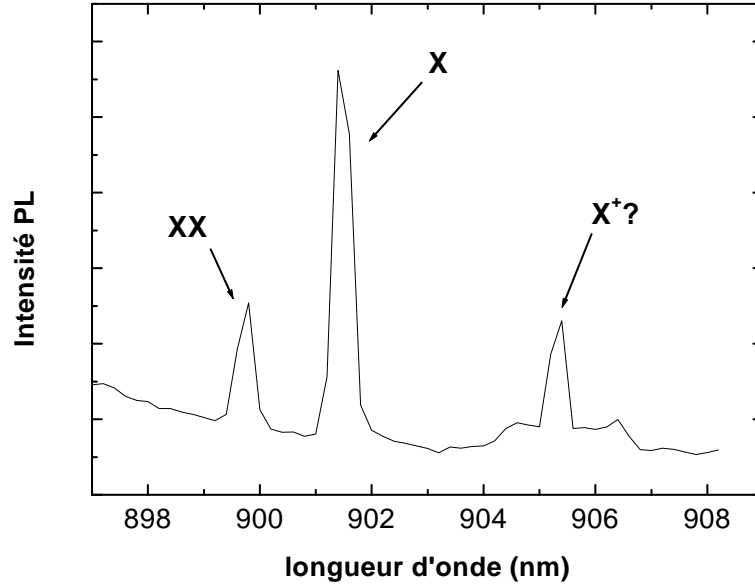


FIG. 3.14 – Spectre de la boîte quantique unique étudiée. Les raies X et XX associées aux états exciton et biexciton sont clairement identifiées. La troisième raie peut être associée à un état exciton chargé ( $X^+$ ) ou à un état multiexcitonique ( $3X, 4X, \dots$ ).

de  $0.6 \mu\text{W}$  ce qui correspond à  $0.6P_{sat}$ . L'entrée “start” de l'analyseur est alimentée par le signal associé à la raie inconnue et l'entrée “stop” par celui associé à l'état biexciton. L'acquisition a duré 316 min avec  $N_1 = 19000$  coups/s et  $N_2 = 18000$  coups/s (associé au biexciton). Les “coups noirs” des photodiodes sont retirés de l'histogramme qui est alors normalisé pour donner  $g_{X^?,XX}^{(2)}(\tau)$ .

**Corrélation entre la raie inconnue et la raie X** L'histogramme de corrélation entre la raie inconnue et la raie X est présenté figure 3.16. La puissance incidente est de  $0.2 \mu\text{W}$  ce qui correspond à  $0.2P_{sat}$ . L'entrée “start” de l'analyseur est alimentée par le signal associé à la raie inconnue et l'entrée “stop” par celui associé à l'état exciton. L'acquisition a duré 57 min avec  $N_1 = 17000$  coups/s et  $N_2 = 19000$  coups/s (associé à l'exciton). Les “coups noirs” des photodiodes sont retirés de l'histogramme qui est alors normalisé pour donner  $g_{X^?,X}^{(2)}(\tau)$ .

Tout d'abord, les figures 3.15 et 3.16 présentent toutes les deux un creux de dégroupement de photons autour de  $\tau = 0$ . C'est la preuve que cette raie provient bien de la même boîte quantique. La figure 3.15 semble indiquer que cette raie ne provient pas de

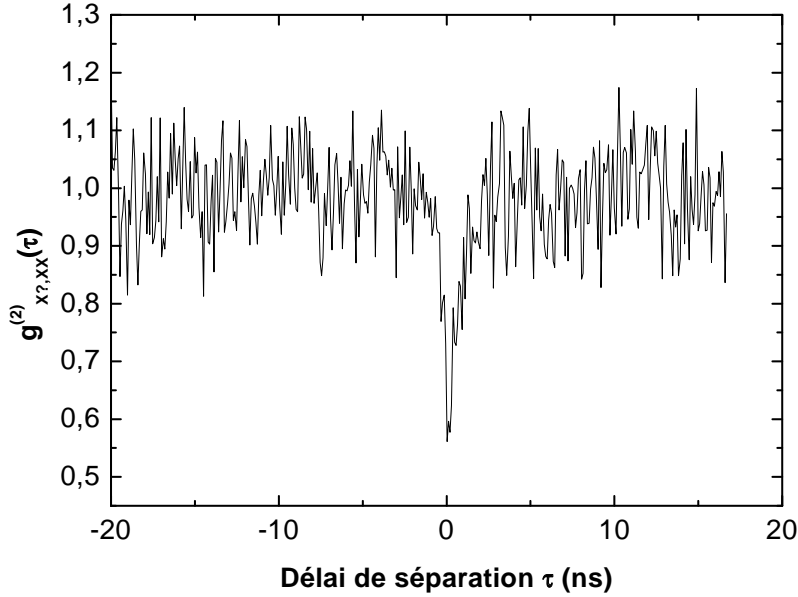


FIG. 3.15 – Histogramme de corrélations croisées entre la raie inconnue et la raie XX, sous excitation continue.  $\tau > 0$  correspond à l'arrivée d'un photon XX après un photon provenant de la raie inconnue.

l'état triexciton  $3X$ . Dans le cas contraire l'histogramme de corrélation croisée avec la raie XX présenterait une allure en "S" avec un pic de corrélation pour  $\tau > 0$ , de manière tout à fait similaire aux corrélations croisées entre raies X et XX. L'état triexciton prépare en effet le système dans l'état biexciton.

La fonction de corrélation obtenue est *a priori* compatible avec l'attribution de l'état inconnu à un exciton chargé ou à un état quadriexcitonique  $4X$ . La recombinaison d'un état biexciton prépare la boîte quantique dans l'état exciton et ne doit pas en principe conduire à des états excitons chargés. On ne s'attend donc pas à observer de pic de corrélation entre la raie XX et la raie inconnue, mais uniquement un creux de corrélation caractéristique du temps de passage de la boîte quantique entre l'état chargé et l'état non chargé. L'observation d'un creux de corrélation de 2 ns de large signifierait que le temps de passage entre état chargé et non chargé est relativement court. Ces résultats seraient en accord avec la mesure du temps de vie apparent dans les expériences d'auto-corrélation. Nous avons en effet vu que cet allongement du temps de vie apparent pouvait être causé par l'existence d'un état en compétition avec l'état exciton. Des résultats semblables ont également été observés par A. Kiraz *et al.* [108] lors d'expériences de corrélation croisée avec une raie inconnue. Ils attribuent également cet état inconnu à un état exciton chargé.

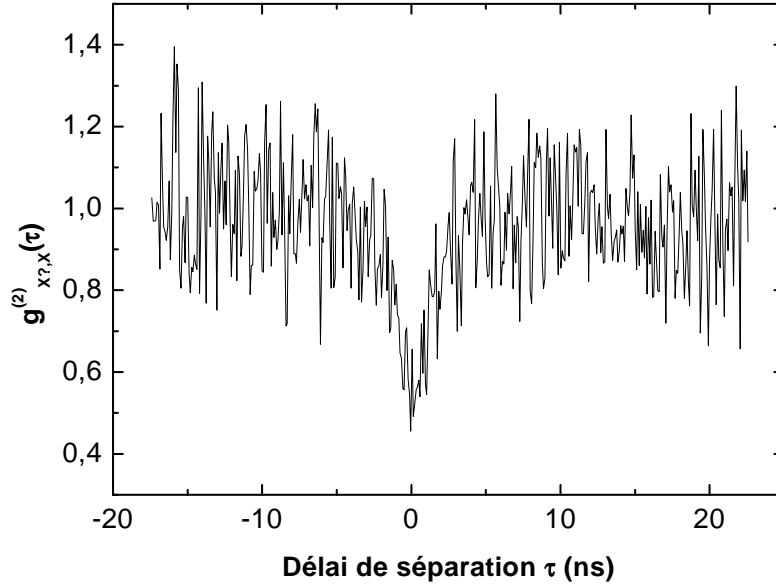


FIG. 3.16 – Histogramme de corrélations croisées entre la raie inconnue et la raie X, sous excitation continue.  $\tau > 0$  correspond à l'arrivée d'un photon X après un photon provenant de la raie inconnue.

Enfin, les mesures de dépendance de l'intensité de la raie inconnue avec la puissance d'excitation indiquent une dépendance polynomiale moyenne de degré 1.5. Cette dépendance n'est pas compatible avec celle associée à un état multiexcitonique  $nX$  avec  $n > 3$ , qui doit être de degré  $n$ . Ceci conforte notre attribution de la raie à un état exciton chargé. Des mesures spectroscopiques de photoluminescence avec une meilleure résolution pourraient permettre d'isoler plus facilement cette raie de l'environnant et de déterminer plus exactement son comportement en puissance.

Ainsi pour comprendre et résoudre l'identification des raies il faut combiner plusieurs techniques telles que les corrélations croisées ou la dépendance en puissance de l'intensité de photoluminescence. Mais, très clairement, les expériences de corrélations croisées sont un outil très puissant pour aborder ce type de problème.

### 3.4 Perspectives pour l'émission de photons intriqués

Dans les sections précédentes nous avons démontré qu'il était possible d'émettre des paires de photons corrélés dans le temps. Il s'agit d'une première étape essentielle pour l'émission d'états intriqués en polarisation. Cette possibilité a été suggérée par Benson *et*

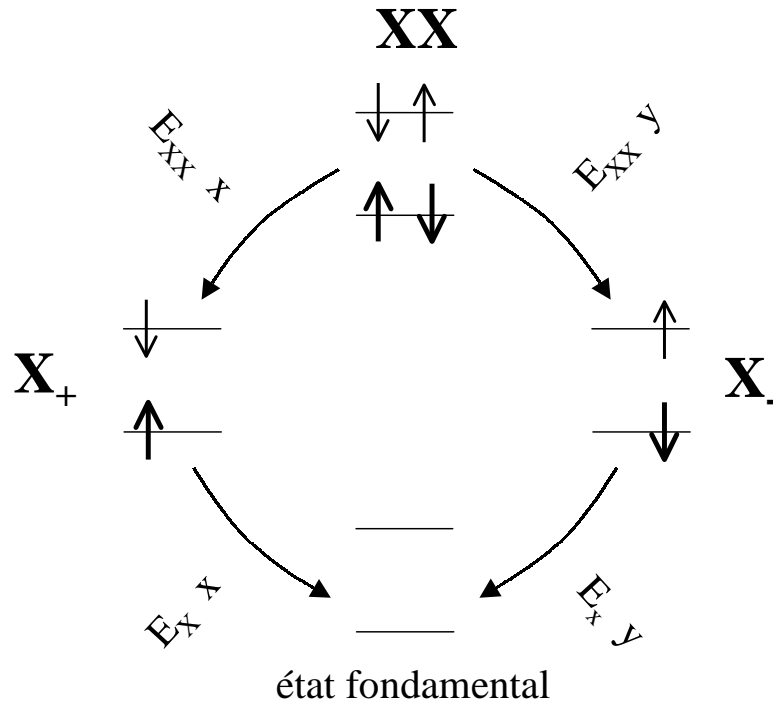


FIG. 3.17 – Schéma de génération d'une paire de photons à partir du biexciton dans une boîte quantique. Les flèches fines (grosses) représentent les électrons (trous) de spin  $\pm 1/2$  ( $\pm 3/2$ ) occupant le premier niveau de conduction (de valence). L'énergie ( $E_{XX}$  ou  $E_x$ ) et la polarisation linéaire (x ou y) est indiquée pour chaque photon émis.

*al.* [109] et fait l'objet de nombreux tests expérimentaux. Le principe de base en est rappelé figure 3.17. Le biexciton est un état parfaitement défini : lorsque deux paires électron-trou occupent les premiers niveaux de conduction (spin  $\pm 1/2$ ) et de trous lourds (spin  $\pm 3/2$ ) de la boîte quantique, la paire d'électrons — comme la paire de trous — occupe un état singulet. Comme nous l'avons déjà décrit sur le schéma 2.9, une paire électron-trou seule peut occuper quatre états différents, dont deux seulement,  $X_+$  et  $X_-$ , satisfont aux règles de conservation du moment angulaire pour une recombinaison radiative et sont représentés figure 3.17. La plupart des boîtes quantiques sont légèrement anisotropes, ce qui, par une levée de la dégénérescence du niveau excitonique, impose à la polarisation des photons émis d'être linéaire plutôt que circulaire. La désexcitation du biexciton, avec émission de deux photons d'énergies complémentaires et de même polarisation, peut donc suivre deux chemins différents. Pour les boîtes quantiques d'InAs, comme nous avons pu le voir

sur les différents spectres présentés dans ce travail de thèse, la séparation énergétique éventuelle entre  $X_+$  et  $X_-$  n'est pas résolue. Ces deux chemins ne peuvent donc être distingués tant que l'on ne réalise pas une mesure de la polarisation des photons émis, ce qui satisfait la principale condition nécessaire pour l'intrication de leurs polarisations. Cette dégénérescence entre les états  $X_+$  et  $X_-$  peut se lever spectralement en appliquant un champ magnétique à l'hétérostructure, comme l'ont montré Y. Toda *et al.* [110] ou A. Kuther *et al.* [111] sur des boîtes quantiques  $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$  ou encore M. Bayer *et al.* [112] sur des ensembles  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  fabriqués par lithographie et gravure de puits quantiques. Ce dédoublement des raies, induit par l'asymétrie géométrique de la boîte, est même visible en champ nul sur des boîtes quantiques à fluctuation d'interface  $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$  [73].

Cette condition n'est cependant pas suffisante ; il faut en effet que les mécanismes de décohérence affectent suffisamment peu l'exciton, état intermédiaire dans cette cascade radiative, à l'échelle de sa durée de vie. L'étude d'excitons radiants préparés par excitation résonante a révélé que leur polarisation est parfaitement conservée pour des températures inférieures à 30 K [113]. Mais il faut noter que l'intrication des photons émis requiert de surcroît une conservation de la phase des deux chemins de désexcitation. Les mesures récentes [86, 87, 114] du temps de déphasage  $T_2$  montrent que celui-ci est nettement plus court que le temps de recombinaison radiative  $T_1$  dès que la température dépasse quelques kelvins. De quelques centaines de picosecondes à 7 K pour des boîtes quantiques  $\text{InGaAs}$ ,  $T_2$  chute en dessous d'une picoseconde à 300 K [86, 115].

Une condition suffisante pour observer l'intrication serait que la largeur des transitions excitoniques limitée par  $T_1$  soit plus grande que l'écart de longueur d'onde entre les deux excitons  $X_+$  et  $X_-$ . Il est donc très probable que l'intrication des paires de photons ne puisse être observée qu'à des températures inférieures à 1 K. Jusqu'à 30 K, il sera par contre possible de générer des paires de photons corrélés du point de vue de leur polarisation, de leur énergie, et bien sûr temporellement.

Notons que la cohérence de phase (ou indiscernabilité) entre les photons émis consécutivement est également un prérequis pour l'application à l'ordinateur quantique. Une solution pourrait consister à diminuer le temps de vie radiatif  $T_1$  en plaçant la boîte quantique en résonance avec une microcavité, de manière à faire passer  $T_1$  en dessous de  $T_2$ .

Des paires de photons corrélés en polarisation ont été récemment observées en



utilisant ce protocole [116]. Les photons X et XX émis lors de la même impulsion présentent la même polarisation linéaire, à condition que la base de polarisation prise pour la mesure soit identique à celle dans laquelle les photons sont émis. Aucun effet d'intrication n'est donc observé dans cette expérience puisque les corrélations disparaissent dès que l'on change de base. Santori *et al.* expliquent cette absence d'intrication par une levée en dégénérescence des deux excitons radiants ( $X_-$  et  $X_+$ ), due à l'anisotropie de leur boîte quantique. Cependant cette séparation en énergie n'est pas résolue sur leurs spectres de photoluminescence.

Compte tenu des conditions citées précédemment, nous pensons plutôt que la principale explication à l'absence d'intrication est la température relativement trop haute (5 K) à laquelle a été réalisée l'expérience, qui entraîne des mécanismes de déphasage.

Ces expériences sur des paires de photons corrélés en polarisation constituent également une étape essentielle vers l'observation d'états intriqués.

### 3.5 Conclusion

Ces expériences de corrélation croisée sont un outil remarquable pour contribuer à l'identification des raies d'émission d'une boîte quantique unique. Les expériences réalisées sont très "propres" ; contrairement aux expériences de spectroscopie résolue en temps, les courbes obtenues ne dépendent pas des mécanismes de relaxation et de diffusion précédant l'émission des photons X ou XX. Ce sont directement les processus dynamiques d'émission de la boîte quantique qui sont sondés.

Les résultats obtenus démontrent l'émission de paires de photons corrélés dans le temps, première étape essentielle vers l'émission d'états intriqués. Pour observer des effets de l'intrication, une première possibilité consiste à réaliser des expériences à très basse température ( $\sim 1$  K), afin que le temps de déphasage  $T_2$  soit limité par le temps de vie radiatif  $T_1$  de la boîte quantique. Une deuxième possibilité consiste à utiliser des boîtes quantiques de grande force d'oscillateur formées par les fluctuations d'épaisseur des puits quantiques, pour lesquelles  $T_2$  reste limité par  $T_1$  jusqu'à relativement haute température ( $\sim 20$  K) [85]. Enfin, l'effet Purcell, en plaçant une boîte quantique en résonance avec le mode d'une microcavité, peut permettre de diminuer  $T_1$  et de retrouver la condition de cohérence de phase à l'échelle du temps de vie.

## Chapitre 4

# Contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques uniques dans les micropiliers

Dans les sections précédentes nous avons étudié les propriétés d'émission des boîtes quantiques uniques. Les propriétés de dégroupement de photons observées en font un émetteur de choix pour réaliser une source à un photon. Cependant une deuxième condition est nécessaire à la réalisation d'une source à un photon efficace; son efficacité doit être la plus élevée possible. Si la plupart des impulsions délivrées par la source sont vides, les coups noirs des photodétecteurs sont relativement plus importants, ce qui augmente le taux d'erreur pour des applications telles que la cryptographie quantique [35, 36, 37, 38, 39] en plus de rallonger les temps de communication (voir partie 1.3).

Or, le taux d'extraction des photons pour les boîtes quantiques dans les *mesas* gravés étudiés auparavant n'est que de quelques pour-cent, à cause de la forte différence d'indice entre l'air et le GaAs [117]. De plus, les photons sont émis dans un continuum de modes électromagnétiques. L'émission dans un même mode spatial est impérative pour l'application à l'ordinateur quantique (voir partie 1.4). Elle est souhaitable pour la distribution de clefs quantiques car elle facilite la collection des photons et garantit que le train de photons se propagera avec la même vitesse de groupe dans une fibre optique. Il faut donc préparer tous les photons dans un même mode. Une solution consiste à utiliser des cavités, telles que les cristaux photoniques [118, 119, 120] ou les micropiliers [121, 122, 123], pour rediriger l'émission dans une seule direction et préparer les photons dans un même

mode électromagnétique. Les micropiliers sont, à l'heure actuelle, la technologie la plus mature et la mieux adaptée à ces deux applications.

Des expériences d'électrodynamique quantique, en particulier la démonstration de l'effet Purcell [124], ont déjà été réalisées sur des ensembles de boîtes quantiques [21, 33]. Ces mêmes expériences, mais sur des boîtes quantiques uniques, sont plus compliquées à cause de la difficulté à isoler un seul de ces émetteurs dans un micropilier. Ce chapitre a ainsi pour objet la démonstration d'effets d'électrodynamique quantique en cavité sur une boîte quantique unique. L'électrodynamique quantique en cavité constitue en effet depuis 1990 une source d'inspiration essentielle pour la recherche fondamentale en optoélectronique [52, 125].

Nous rappellerons tout d'abord les notions de couplage fort et couplage faible en cavité. Ce dernier sera plus amplement étudié : nous introduirons l'effet Purcell et ses conséquences en terme d'efficacité de collection des photons et d'émission monomode. Nous présenterons succinctement les micropiliers, étudiés expérimentalement par la suite. Nous mettrons alors en évidence l'effet Purcell par des expériences d'exaltation de l'émission spontanée. Nous verrons enfin la possibilité d'exploiter l'effet Purcell pour collecter les photons dans un quasi-monomode et contrôler leur polarisation. La plupart de ces résultats sont publiés dans [123].

## 4.1 Rappels d'électrodynamique quantique en cavité

Nous rappellerons ici uniquement quelques bases d'électrodynamique quantique indispensables à ce travail de thèse. Pour des introductions plus générales, les ouvrages de Loudon [126] et Cohen-Tannoudji *et al.* [127] constituent d'excellentes bases. Signalons également une présentation courte de l'électrodynamique quantique en cavité dans les domaines de la physique atomique par Haroche et Kleppner [128].

### 4.1.1 Couplage fort

L'insertion d'un émetteur en cavité permet de modifier le couplage de l'émetteur au champ électromagnétique. Il s'agit d'une modification en profondeur de ses propriétés d'émission. En ce qui concerne l'émission spontanée, deux régimes différents peuvent se présenter, dits de couplage faible et de couplage fort. Dans le régime de couplage fort, l'émetteur est couplé préférentiellement à un mode unique. Ce couplage entre l'émetteur

et le champ est caractérisé par la pulsation de Rabi  $\Omega = \sqrt{\frac{\omega d^2}{2\epsilon_0 \hbar n^2 V_{eff}}}$ , où  $\omega$  est la pulsation du mode de cavité et  $V_{eff}$  le volume effectif du mode (défini plus loin).  $d$  est le dipôle de l'émetteur et  $n$  l'indice du milieu. L'émetteur et le mode échangent de l'énergie de façon réversible. Un photon peut être absorbé puis réémis par l'émetteur (et ainsi de suite) avant de pouvoir s'échapper de la cavité. C'est le phénomène des oscillations de Rabi. Ces oscillations sont amorties si d'autres phénomènes affectent l'évolution de ce système couplé. D'une part, le temps de vie du photon peut être limité par les pertes de la cavité. D'autre part, l'oscillation de Rabi est amortie quand la désexcitation de l'émetteur dans d'autres modes devient importante. Les oscillations de Rabi disparaissent pour laisser la place à un déclin exponentiel : on est alors dans le régime de couplage faible.

#### 4.1.2 Couplage faible

Le régime de couplage faible s'instaure lorsque l'émetteur est couplé à un continuum de modes et non pas à un mode unique. L'émission dans l'espace libre en constitue un exemple. C'est aussi le cas lorsque les pertes de la cavité induisent un sur-amortissement de l'oscillation de Rabi. Le couplage faible est obtenu lorsque le temps de relaxation du photon hors de la cavité est inférieur à la constante de temps du couplage atome/champ confiné (ou autrement dit lorsque le "splitting" de Rabi est plus faible que la largeur du mode de cavité). Le temps de relaxation  $\tau_{rel}$  des photons hors de la cavité est donné par  $\tau_{rel} = Q/\omega$  où  $Q$  est le facteur de qualité de la cavité et  $\omega$  la fréquence d'émission. La constante de temps du couplage atome/champ confiné est donné par la période des oscillations de Rabi  $\tau_{Rabi}$ .

Dans ce cas, le taux d'émission spontanée  $\Gamma$  de l'émetteur est augmenté d'un facteur  $F_p$ , appelé facteur de Purcell [124], par rapport au taux d'émission dans le vide  $\Gamma_0$ . La règle d'or de Fermi permet d'écrire le taux d'émission spontanée du dipôle  $\vec{d}$  en présence du champ électromagnétique  $\vec{E}$  :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \langle e, 0 | - \vec{d} \cdot \vec{E} | g, 1 \rangle \right|^2 \rho(\omega) \quad (4.1)$$

où  $|e, 0\rangle$  correspond au dipôle excité avec zéro photon dans le mode, et  $|g, 1\rangle$  au dipôle dans son état fondamental avec un photon dans le mode.  $\rho(\omega)$  est la densité d'états du champ électromagnétique à la fréquence  $\omega$ . Ainsi l'émission spontanée est modifiée par la densité de modes du champ  $\rho(\omega)$ , par la valeur du champ électromagnétique  $\vec{E}$  et par l'alignement nouveau du champ par rapport au dipôle. Le calcul que l'on peut trouver

dans [52, 29] conduit à l'expression suivante du facteur de Purcell :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q\lambda^3}{V_{eff}} \quad (4.2)$$

où  $V_{eff}$  est le volume effectif du champ confiné, défini par :

$$V_{eff} = \frac{\iiint_{espace} |\vec{E}|^2}{|\vec{E}_{max}|^2} \quad (4.3)$$

Ce calcul n'est valide que si la largeur spectrale de l'émetteur en résonance est inférieure à celle du mode. Dans le cas contraire, le facteur d'exaltation dans le mode s'écrit  $F_{cav} = F_p Q_e / Q$ , où  $Q_e$  est la finesse de l'émetteur (associée à sa largeur homogène sans prise en compte du couplage au champ) [76]. Il faut également que l'émetteur soit placé spectralement au maximum de la densité de modes et soit situé spatialement au ventre du champ. Le facteur de Purcell est donc un facteur de mérite de la cavité seule, qui indique quelle est l'exaltation maximale du taux d'émission spontanée qu'elle peut prodiguer, sous réserve qu'un émetteur "idéal" soit employé.

Dans le cas général, une microcavité tridimensionnelle solide présente des modes résonants mais aussi des modes de fuite, comme nous le verrons par la suite pour les micropiliers et les microdisques [129]. Le taux d'émission spontanée total  $\Gamma_t$  est :

$$\Gamma_t = (F_p + \gamma)\Gamma_0 \quad (4.4)$$

où  $\gamma/\Gamma_0$  est le taux d'émission spontanée dans les modes de fuite. Dans la suite nous appelons  $F$  le facteur d'exaltation total de l'émission spontanée, défini par  $F = \Gamma_t/\Gamma_0$ .

## 4.2 Effet Purcell et collection de l'émission spontanée

On voit dès lors que l'on peut exploiter l'effet Purcell pour émettre préférentiellement les photons dans le mode de cavité par rapport aux modes de fuite. L'intérêt des micropiliers pour le contrôle de l'émission spontanée a été reconnu dès 1991 [130]. En effet, si  $F \gg \gamma$  le photon a une probabilité beaucoup plus grande d'être émis dans le mode de la cavité plutôt que dans n'importe quel autre mode. On définit ainsi  $\beta$  la fraction des photons couplés au mode de la cavité. Pour un émetteur idéalement placé en résonance, ce taux s'exprime de la façon suivante :

$$\beta = \frac{F_p}{F_p + \gamma} \quad (4.5)$$

Si le mode est dégénéré  $g$  fois (nous verrons que  $g = 2$  pour les micropiliers à section circulaire et  $g = 1$  pour ceux à section elliptique), le coefficient de couplage au mode s'écrit alors :

$$\beta = \frac{F_p}{gF_p + \gamma} \quad (4.6)$$

Le dipôle des boîtes quantiques est situé aléatoirement dans le plan  $xy$  [131]. Dans la règle d'Or de Fermi, le moyennage du terme  $\vec{d} \cdot \vec{E}$  dans le plan  $xy$  conduit à une réduction d'un facteur 2 de  $F_p$ . Le taux de photons couplés au mode confiné s'écrit alors :

$$\beta = \frac{F_p/2}{gF_p/2 + \gamma} \quad (4.7)$$

Enfin, dans le cas où l'émetteur n'est pas placé parfaitement en résonance avec le mode de cavité, l'effet Purcell a une amplitude plus faible. Celle-ci peut se calculer à partir du facteur de Purcell  $F_p$  pour un émetteur idéal placé spatialement et spectralement au centre du mode. Ainsi pour un émetteur placé à la position  $\vec{r}$  différente du centre de la cavité ( $\vec{r} = \vec{0}$ ) et émettant à l'énergie  $E_{em}$  différente de l'énergie  $E_{cav}$  au centre du mode, le facteur de Purcell atténué  $F_p(\vec{r}, E_{em})$  s'exprime de la façon suivante [76] :

$$F_p(\vec{r}, E_{em}) = \frac{|\vec{E}(\vec{r})|^2}{|\vec{E}(\vec{0})|^2} \frac{\rho(E_{em})}{\rho(E_{cav})} F_p \quad (4.8)$$

Le facteur de Purcell est ainsi atténué par la diminution de l'intensité du champ électromagnétique  $|\vec{E}(\vec{r})|^2$  et de la densité d'états  $\rho(E)$ .

Pour des facteurs de Purcell de l'ordre de 10, facilement accessibles avec les cavités tridimensionnelles, on voit qu'il est possible de collecter plus de 90% de l'émission dans le mode de la cavité. C'est ce principe même qui nous laisse penser que des taux d'efficacité de collection proches de 1 sont possibles pour notre source à un photon.

Notons qu'en plus de cette redirection de l'émission, les photons sont préparés dans un seul et même mode électromagnétique : celui de la cavité. Si ce mode n'est pas dégénéré alors l'émission peut vraiment être qualifiée de monomode.

### 4.3 Présentation des micropiliers

La partie précédente nous incite à développer aux fréquences optiques des cavités tridimensionnelles de grand  $Q$  et de petit volume afin d'obtenir des facteurs de Purcell  $F_p$  les plus élevés possibles. Il existe des cavités entièrement diélectriques comme les micropiliers [121, 122], les microdisques [32, 129, 132], les microsphères [133] et les cavités

à base de cristal photonique [118, 119, 120]. Dans cet ouvrage, nous nous limiterons à présenter les micropiliers à miroirs de Bragg GaAs/AlAs qui ont été utilisés au cours de ce travail de thèse. La thèse de B. Gayral constitue un excellent ouvrage d'introduction à ces microcavités [76]. Les micropiliers ont d'abord été introduits par Jewell *et al.* [121].

Ces micropiliers sont fabriqués à partir de microcavités planaires [134, 135], lesquelles sont réalisées en une seule étape d'épitaxie. Ces dernières sont constituées de deux miroirs plans parallèles, appelés miroirs de Bragg (DBR), enserrant une cavité qui contient les boîtes quantiques.

Un miroir de Bragg est formé d'alternances de couches de GaAs (épaisseur  $l_1$ , indice  $n_1 = 3.495$ ) et d'AlAs (épaisseur  $l_2$ , indice  $n_2 = 2.95$ ), d'indices diélectriques différents (voir schéma 4.1). Ces miroirs permettent d'obtenir des réflectivités très élevées ( $> 99.9\%$ ) par des effets d'interférences constructives. Le nombre de paires de couches détermine la réflectivité du miroir de Bragg, et *in fine* la finesse de la cavité. L'épaisseur des couches est choisie de manière à vérifier la condition de Bragg :

$$n_1 l_1 = n_2 l_2 = \frac{\lambda_{Br}}{4} \quad (4.9)$$

où  $\lambda_{Br}$  est la longueur d'onde de Bragg, pour laquelle la réflectivité du miroir en incidence normale est maximum. La réflectivité est élevée sur une plage appelée *stop-band*, de largeur  $\Delta\lambda \sim \frac{n_1 - n_2}{\pi(n_1 + n_2)}$ .

Les deux miroirs sont séparés par une épaisseur  $L$  de GaAs afin de constituer une cavité de type Fabry-Pérot. Une microcavité planaire permet ainsi de confiner le champ électromagnétique dans une seule direction, celle normale aux miroirs de Bragg. Si la longueur optique  $n_1 L$  est prise égale à un multiple de  $\lambda_{Br}$ , il y a un ventre de champ électromagnétique au centre de la cavité. Nos microcavités ont été fabriquées avec  $n_1 L = \lambda_{Br}$ .

Les micropiliers sont alors obtenus par lithographie électronique puis par gravure ionique réactive (RIE) d'une microcavité planaire. Un tel micropilier est représenté schématiquement figure 4.1. Une image MEB (microscopie électronique) d'un micropilier est également présentée figure 4.2. Une description détaillée du processus de fabrication peut être trouvée dans [76]. Des micropiliers à section circulaire et elliptique (ellipticité allant jusqu'à 40%) ont ainsi été fabriqués avec des diamètres s'étalant de  $40 \mu\text{m}$  à  $0.5 \mu\text{m}$ . En dessous de  $0.7 \mu\text{m}$  les micropiliers sont généralement endommagés, en particulier lorsque le nombre de paires est élevé.

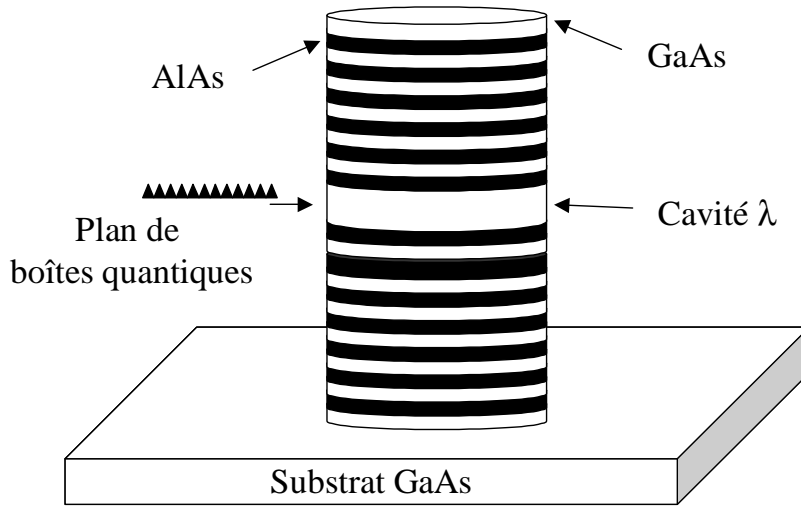


FIG. 4.1 – Schéma des micropiliers étudiés dans cet ouvrage de thèse. Cette microcavité confine la lumière dans les trois directions de l'espace.

Dans une image d'optique géométrique, un cylindre d'indice élevé dans l'air constitue un guide d'ondes pour un rayon lumineux possédant une direction de propagation voisine de l'axe du cylindre. Lorsque l'énergie et l'angle sont dans une plage de forte réflectivité du miroir de Bragg, le rayon est confiné à trois dimensions, à l'intérieur de la cavité. La combinaison de la réflexion totale interne et de l'effet des miroirs de Bragg permet de piéger la lumière à trois dimensions dans cette structure diélectrique [136].

On s'attend à ce que ce confinement tridimensionnel conduise à la formation de modes confinés discrets. La construction de ces derniers à partir des modes guidés du cylindre de GaAs permet de confirmer cette proposition attendue et d'obtenir très simplement une expression approchée pour l'énergie des modes et la distribution du champ électromagnétique. On peut montrer que chaque mode guidé permet de construire (pour une cavité  $\lambda$ ) un unique mode confiné, dont l'énergie est donnée par  $E = \frac{2\pi\hbar c}{Ln_{eff}(E)}$  avec  $n_{eff}(E)$  l'indice effectif pour le mode à la nouvelle fréquence de résonance  $\omega_0$  [76]. Ce calcul est très naturellement dérivé de la condition de résonance de la cavité plane en prenant en compte la modification de la vitesse de groupe des photons guidés (en pratique, on peut identifier  $n_{eff}(E)$  à  $n_{eff}(E_{2D})$  et éviter la résolution d'un problème autoconsistant).

Il existe d'autres modes, non confinés, correspondant à des directions de propagation des photons qui ne sont pas contrôlées par réflexion totale interne ou par les miroirs de Bragg. Il s'agit d'un continuum de modes type "espace libre", dont la densité d'états



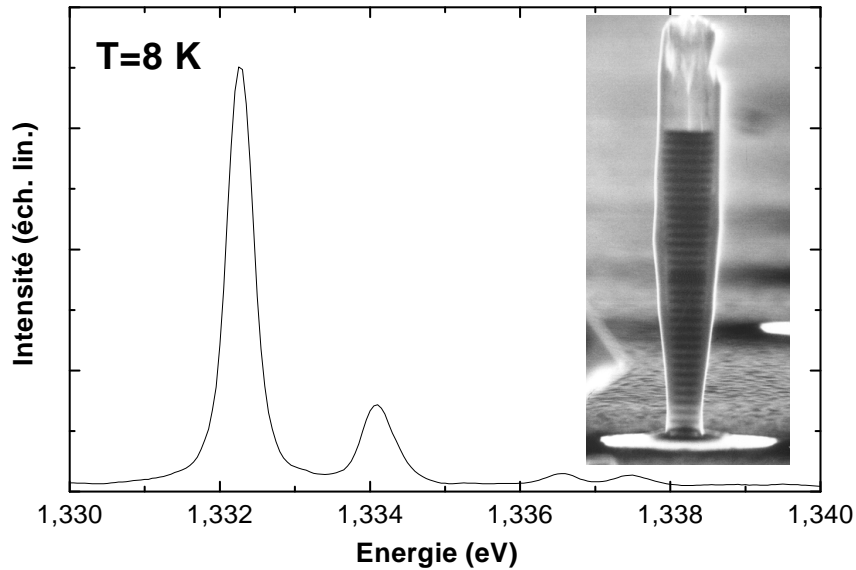


FIG. 4.2 – Photoluminescence d'un micropilier de diamètre  $5\ \mu\text{m}$ . Les différents modes du micropilier sont clairement séparés spectralement. L'encart présente un micropilier de diamètre  $1\ \mu\text{m}$  typiquement étudié dans cet ouvrage de thèse. L'image a été obtenue par MEB (microscopie électronique).

est peu modifiée par la cavité. Les photons peuvent donc aussi être émis dans les modes de fuite de la microcavité, par les flancs de la structure. Notons cependant qu'on peut diminuer cette densité de modes de fuite en déposant un revêtement métallique sur les flancs du micropilier [137].

Les photons sont émis à travers un des deux miroirs de Bragg. L'émission peut être faite de manière préférentielle à travers le miroir supérieur en augmentant le nombre de paires du miroir inférieur.

Les micropiliers ont été caractérisés par réflectivité [138]. Ces expériences fournissent une mesure précise de la largeur du mode de cavité mais sont difficiles à réaliser. Elles nécessitent en effet un laser stabilisé en fréquence pour effectuer le balayage spectral du mode. Une approche plus simple à mettre en œuvre consiste à introduire un plan de boîtes quantiques dans la cavité et à utiliser cet émetteur "large bande" comme sonde active de la structure. Ces caractérisations par microphotoluminescence peuvent être utilisées sous réserve que l'émetteur introduit dans la cavité présente une absorption négligeable, ce qui est bien le cas des boîtes quantiques.

Les mesures spectroscopiques montrent un ensemble de modes discrets (voir figure

4.2) dont la séparation augmente avec l'inverse de la taille du micropilier. Sur cette figure, on note la présence d'un fond continu, dû à l'émission des boîtes quantiques dans le continuum des modes de fuite de la cavité. Parmi les modes discrets, le mode situé à plus basse énergie est le mode fondamental. Seul ce mode va nous intéresser dans la suite de ce travail. Ce mode est caractérisé par sa largeur en longueur d'onde  $\Delta\lambda$ . On définit ainsi le facteur de qualité d'un micropilier comme  $Q = \Delta\lambda/\lambda$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde d'émission du mode.  $Q$  croît avec le nombre de paires de Bragg déposées. Le diagramme de rayonnement associé à ce mode fondamental est constitué d'un pinceau très fin, normal aux miroirs de Bragg. L'ouverture angulaire de ce faisceau est de l'ordre de quelques degrés. A cause de la diffraction (l'ouverture du micropilier a une taille finie) elle augmente avec l'inverse de la taille de ces structures, et atteint  $12^\circ$  pour un micropilier de  $2\ \mu\text{m}$  de diamètre [139]. Cette propriété, associée à un  $\beta$  élevé, constitue un avantage très significatif des micropiliers sur d'autres microcavités, comme par exemple les microdisques. Les modes de cavité de ces derniers sont en effet des modes de galerie, si bien que l'émission dans les modes de cavité s'effectue dans le plan des microdisques. Le rayonnement se fait donc avec une ouverture angulaire de  $360^\circ$ .

Dans le cas des micropiliers à section circulaire ce mode est dégénéré (2 fois) en polarisation. Cette dégénérescence de polarisation peut être levée via l'introduction d'une biréfringence de forme du micropilier. Nous employons ici des micropiliers de section elliptique, pour lesquels l'anisotropie conduit à la formation de deux modes non dégénérés polarisés linéairement selon le grand axe et le petit axe de l'ellipse. Leur séparation, qui peut atteindre plusieurs fois leur largeur spectrale, croît quand on réduit leur taille ou quand on augmente l'excentricité [140].

La qualité de ces structures, disponibles dès le début des années 90, a permis d'obtenir des résultats très encourageants, tels que l'observation du régime de couplage fort pour des puits quantiques dans des microcavités planaires [141], la réalisation de diodes électroluminescentes de haute efficacité exploitant la redistribution angulaire de l'émission spontanée [142], ou encore de microlasers à très faible seuil [143, 144]. Cependant, l'observation de l'effet Purcell a été retardée par le fait que les émetteurs les plus usuels en phase solide présentent une largeur spectrale importante pour des raisons diverses (distribution thermique des électrons dans les semi-conducteurs massifs ou les puits quantiques, couplage aux modes de vibration du réseau pour les atomes de terres rares...). Dans ce contexte, la disponibilité de boîtes quantiques semi-conductrices de bonne qualité a joué

un rôle essentiel et a permis d'observer les résultats suivants.

A l'état de l'art actuel, pour les micropiliers, des facteurs de qualité de 2000 ont été observés pour des diamètres de  $1\ \mu\text{m}$  ( $V_{eff} = 5(\lambda/n)^3$ ) [21]. Pour les microdisques, des facteurs de qualité aussi élevés que 12000 ont été observés pour des diamètres de  $2\ \mu\text{m}$  ( $V_{eff} = 6(\lambda/n)^3$ ) [132, 145]. Ces valeurs, même élevées, ne permettent pas d'atteindre le régime de couplage fort. Pour un micropilier de  $Q = 2000$ , le temps de relaxation du photon hors de la cavité  $\tau_{rel}$  est égal à  $\sim 1\ \text{ps}$  alors que  $\tau_{Rabi} \sim 7\ \text{ns}$  (la force d'oscillateur par boîte quantique, estimée par spectroscopie d'absorption, est de l'ordre de 10 pour la transition fondamentale[146], ce qui donne un dipôle  $d_{x,y} \sim 9 \times 10^{-9}\ \text{C.m}$ ). La condition  $\tau_{rel} \ll \tau_{Rabi}$  indique que nous serons toujours en régime de couplage faible par la suite et nous pouvons donc parler de facteur de Purcell.

De tels micropiliers permettent d'atteindre des facteurs de Purcell de 32 et ces microdisques conduisent à des facteurs de Purcell records de 190 . Pour des microcavités de cette qualité, on s'attend ainsi à observer des effets marqués sur l'émission spontanée. Un raccourcissement du temps de vie de l'émetteur doit pouvoir être mis en évidence. Egalement, des facteurs de Purcell aussi élevés laissent espérer des taux  $\beta$  de couplage des photons au mode de cavité très proches de l'unité et donc une collection monomode de la lumière émise.

#### 4.4 Mise en évidence expérimentale de l'exaltation de l'émission spontanée

La mise en évidence de l'effet Purcell a d'abord été effectuée sur des atomes dans une cavité formée par des miroirs sphériques de niobium et a permis d'atteindre des facteurs de Purcell de l'ordre de 500 [27]. Les premières démonstrations de l'effet Purcell à l'état solide ont été réalisées en utilisant un ensemble de boîtes quantiques en microcavité [21, 122, 147]. Des facteurs d'exaltation de l'émission spontanée de 5 pour les micropiliers et de 15 pour les microdisques ont été démontrés par des expériences de spectroscopie résolues en temps [32]. Cependant ces valeurs sont inférieures au facteur de Purcell estimé (32 pour les micropiliers et 190 pour les microdisques), car ces boîtes quantiques sont placées spatialement et spectralement de façon aléatoire par rapport au mode de la cavité. Le facteur d'exaltation obtenu est alors une moyenne statistique sur la position des boîtes quantiques dans le micropilier et sur leur longueur d'onde d'émission.

Parmi les tentatives de placer un émetteur unique quasi-monochromatique en résonance avec le mode d'une cavité de grand facteur de Purcell, citons également les travaux de M. V. Artemyev *et al.* [133, 148]. Ceux-ci placent en résonance un nanocristal unique de CdSe en résonance avec le mode de cavité d'une microsphère, et observent un effet Purcell avec un facteur d'exaltation de l'émission spontanée de 5.

L'objet de cette partie est de mettre en évidence l'effet Purcell sur un émetteur unique à l'état solide, en l'occurrence une boîte quantique (voir les publications [123, 149]). Même si la position de la boîte quantique à l'intérieur de la microcavité nous reste inconnue, des études spectroscopiques permettent par contre de déterminer la position spectrale de notre émetteur par rapport au mode de cavité. Ceci constitue une démonstration plus directe de l'effet Purcell comparée aux expériences sur des ensembles de boîtes quantiques.

#### 4.4.1 Mesure directe des temps de vie

L'échantillon utilisé est constitué de micropiliers GaAs/AlAs de différentes tailles, dont le miroir supérieur est constitué de 9 paires de Bragg et le miroir inférieur de 25 paires. Un tel micropilier, de diamètre  $1\ \mu\text{m}$  est représenté dans l'encart de la figure 4.2. Cette différence entre le miroir inférieur et supérieur assure que les photons seront émis très préférentiellement par le miroir supérieur. Le facteur de qualité  $Q_0$  de la cavité planaire dont est issu ce micropilier est de 1000.

La cavité renferme un plan de boîtes quantiques d'InAs (densité  $\sim 4.10^{10}\ \text{cm}^{-2}$ ) dont la largeur spectrale inhomogène est de 60 meV avec un maximum d'émission à 1.31 eV. La longueur optique de la cavité a été volontairement choisie pour que le mode fondamental des plus petits micropiliers ( $\sim 1\ \mu\text{m}$ ) soit situé dans la queue spectrale aux basses énergies de la distribution de boîtes quantiques ( $\sim 1.25\ \text{eV}$ ). Par cette méthode de décalage spectral on isole plus facilement une boîte quantique unique (quelques unités par  $\mu\text{m}^{-2}$ ).

Un spectre typique obtenu sous excitation continue pour un micropilier à section circulaire et de diamètre  $0.9\ \mu\text{m}$  est présenté figure 4.3. A faible puissance d'excitation on injecte en moyenne nettement moins d'une paire électron-trou par temps de vie de l'exciton. Par conséquent, dans ce régime, on observe uniquement les raies X des différentes boîtes quantiques. Chaque raie correspond à une boîte quantique. Ceci est confirmé par le fait que les raies X ont une dépendance linéaire avec la puissance d'excitation. A forte puissance d'excitation on injecte au contraire un très grand nombre de paires électron-trou. L'interaction entre porteurs provoque un élargissement spectral des raies, si bien que

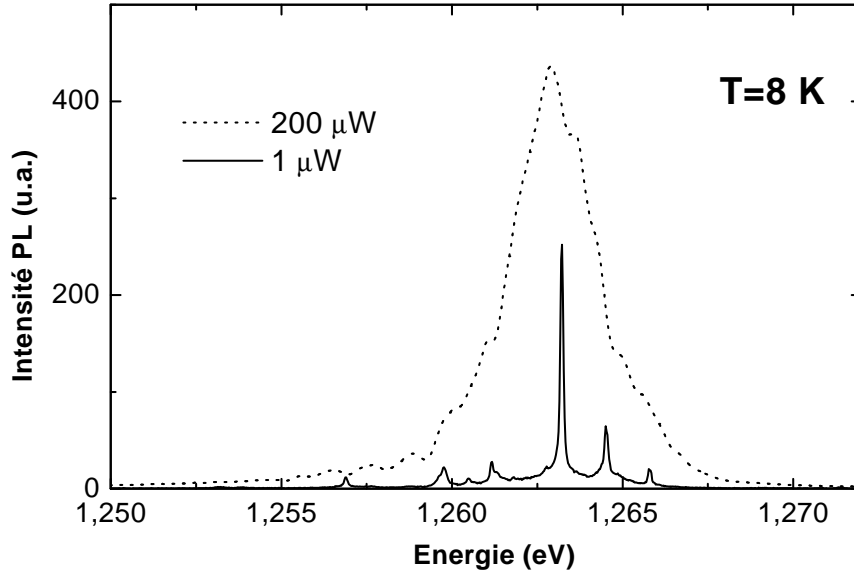


FIG. 4.3 – Spectres d'un micropilier de diamètre  $0.9\ \mu\text{m}$  sous excitation continue pour des puissances de  $1\ \mu\text{W}$  (trait plein) et  $200\ \mu\text{W}$  (en pointillé). L'intensité du spectre à  $200\ \mu\text{W}$  a été divisée par 30. A faible puissance d'excitation (trait plein), on observe les raies X des différentes boîtes quantiques. A forte puissance d'excitation, l'émission de ces mêmes émetteurs est élargie par la présence d'un plasma de porteurs, ce qui permet de visualiser le mode fondamental de la cavité (en pointillé). Pour cette taille de micropiliers, une seule boîte quantique unique est en résonance avec le mode de la cavité.

les boîtes quantiques émettent sur un large domaine spectral comprenant le mode de la cavité. Ce mode est ainsi visualisé (en pointillé) sous ces conditions de forte excitation sur la figure 4.3.

Le mode présenté figure 4.3 est centré à  $1.2630\ \text{eV}$  et a une largeur spectrale  $\Delta E = 2.8\ \text{meV}$ . On en déduit le facteur de qualité  $Q = 450$ , ce qui donne pour le facteur de Purcell  $F_p = 8.3$ . La raie associée à la boîte quantique (située à  $1.2632\ \text{eV}$ ) en résonance avec le mode est nettement plus intense que celles associées aux boîtes quantiques hors-résonance. C'est une conséquence de la redistribution spatiale de l'émission spontanée ; l'émission de la boîte quantique en résonance est quasi-intégralement collectée car elle se fait très majoritairement normalement aux miroirs (dans le mode de la cavité). En revanche l'émission des boîtes quantiques hors résonance se fait par les flancs du micropilier (modes de fuite) et est très mal collectée par notre dispositif expérimental<sup>1</sup>. Dans la suite de ce

<sup>1</sup>Notons que cet effet ne permet pas de distinguer à lui seul entre redistribution spatiale de l'émission spontanée (à taux d'émission spontanée constant) et exaltation de l'émission spontanée.

mémoire de thèse, cette boîte quantique (celle en résonance) sera toujours désignée par  $BQ_{cav}$ .

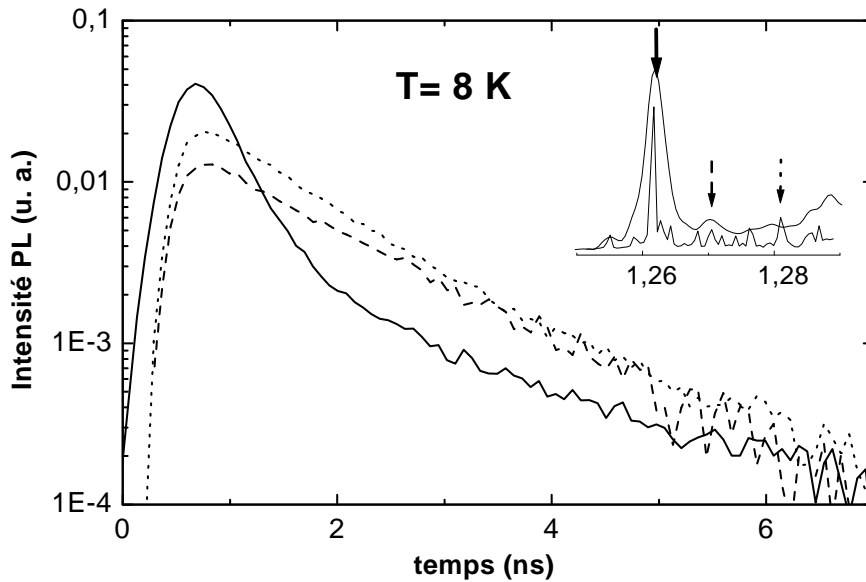


FIG. 4.4 – Signal résolu en temps de l'intensité de photoluminescence pour une boîte quantique en résonance (en trait plein) et deux boîtes quantiques hors résonance (en pointillé et en tireté). L'encart représente les spectres du micropilier à faible (100 nW) et forte puissance d'excitation ( $1 \mu\text{W}$ , signal divisé par 5). Les flèches indiquent les boîtes quantiques en question. Le temps de vie de la boîte quantique en résonance est 3 fois plus court que pour celles hors résonance. C'est une signature de l'effet Purcell.

Des mesures de temps de vie ont été réalisées sur ces boîtes quantiques en modifiant le montage expérimental Hanbury Brown et Twiss, opération déjà décrite dans l'annexe B et la partie 2.3. La figure 4.4 présente les courbes de déclin de la photoluminescence pour une boîte quantique en résonance avec le mode et pour deux boîtes quantiques hors résonance. Un fond continu correspondant aux coups noirs des photodétecteurs est retiré. Les courbes ont alors une allure monoexponentielle, excepté pour la boîte quantique en résonance aux temps longs. Ce comportement provient du fait que le signal de photoluminescence émis par la boîte quantique a perdu plus d'une décade en intensité, si bien que le signal de fond, dont le temps de déclin est beaucoup plus long, devient prépondérant.

On voit très clairement que les boîtes quantiques hors résonance ont un temps de vie plus long que pour la boîte quantique en résonance. Les pentes des courbes donnent un temps de vie de 1.1 ns et de 1.3 ns pour les boîtes quantiques hors résonance comparé à 400 ps (limite de la résolution du dispositif expérimental) pour celle en résonance. Les

temps de vie trouvés pour les boîtes hors résonance sont tout à fait similaires aux temps de vie pour des boîtes quantiques dans un substrat de GaAs. Ce résultat nous permet d'estimer le taux d'émission spontanée dans les modes de fuite pour une boîte quantique hors résonance ( $\gamma \sim 1$ ).

Le facteur  $F$  d'exaltation de l'émission spontanée pour la boîte quantique en résonance est donc au moins égal à 3. Compte tenu de la position spectrale de la raie associée à l'exciton dans le mode de la cavité et en supposant que la boîte quantique soit placée au maximum du champ électromagnétique, le facteur d'exaltation théorique ( $F_p + 1$ ) vaudrait  $F = 9$ .

L'observation de l'effet Purcell est très claire. L'expérience montre en particulier que la boîte quantique est "raisonnablement bien placée" par rapport au mode de cavité. Cependant, la résolution limitée de notre dispositif résolu en temps ( $\sim 400$  ps) ne nous permet pas de comparer plus précisément valeur expérimentale et valeur attendue pour  $F$ .

#### 4.4.2 Etude de la saturation des boîtes quantiques

Une autre manière simple de mettre en évidence l'effet Purcell sur une boîte quantique unique consiste à étudier la dépendance de son émission en fonction de la puissance sous excitation continue et à la comparer au comportement de boîtes quantiques hors résonance. Nous avons vu au chapitre 2 que l'intensité émise par une boîte quantique sature lorsqu'on apporte en moyenne une paire électron-trou par temps de vie de la boîte. Si ce temps de vie est raccourci par l'effet Purcell, on s'attend à observer le phénomène de saturation pour une puissance plus élevée ainsi qu'une émission plus intense dans ce régime de saturation. Cette étude doit donc nous permettre de mesurer l'amplitude de l'effet Purcell.

La figure 4.5 présente la dépendance en puissance de l'émission de la boîte quantique  $BQ_{cav}$ , étudiée précédemment sous spectroscopie de microphotoluminescence résolue en temps. Son émission est comparée à celle d'une boîte quantique hors résonance, située au-delà de la *stop-band* des miroirs de Bragg. Les boîtes quantiques hors résonance sont plus faciles à observer au delà de la *stop-band* des miroirs. En effet, à l'intérieur de la *stop-band* leur émission est réfléchiée par ces mêmes miroirs puisqu'elles ne sont pas couplées au mode. Nous constatons premièrement que l'émission de la boîte quantique en résonance est nettement plus intense que pour celle hors résonance. C'est une première mise en évidence

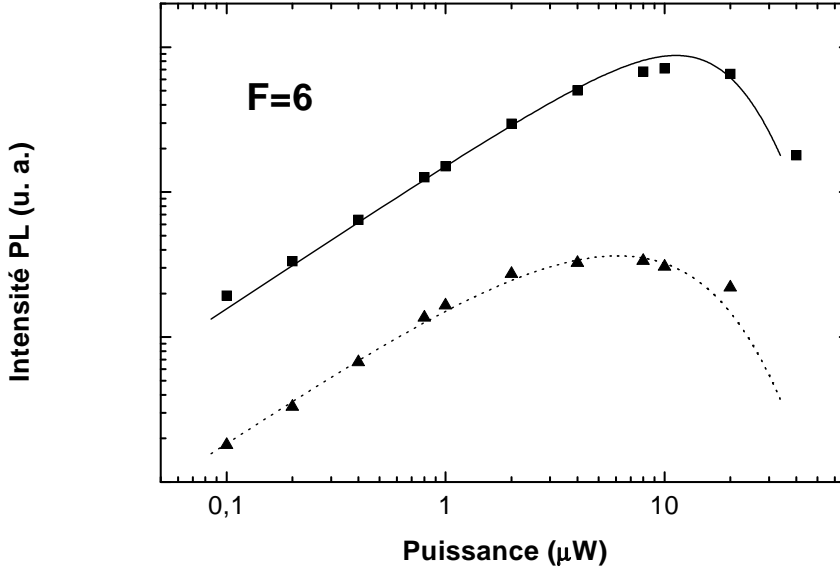


FIG. 4.5 – Evolution des intensités intégrées des raies d'émission en fonction de la puissance d'excitation pour la boîte quantique en résonance avec le mode  $BQ_{cav}$  (symbole *carré*) et une boîte quantique hors résonance (symbole *triangle*) située au delà de la *stop-band* des miroirs. L'émission de la boîte quantique en résonance sature pour une puissance d'excitation supérieure à la puissance de saturation de l'autre émetteur : c'est une conséquence de l'effet Purcell. Les courbes en trait plein et en pointillé sont issues du modèle 4.10, pour des valeurs de  $F$  respectivement égales à 6 et 1.

de l'effet Purcell, qui redirige l'émission de la boîte quantique en résonance normalement au miroir de Bragg et est ainsi très bien collectée par notre système de collection. Au contraire, la boîte quantique hors résonance rayonne de manière quasi-isotrope et son émission est donc moins bien collectée.

On constate également que l'émission de la boîte quantique en résonance sature pour une puissance d'excitation supérieure à la puissance de saturation de la boîte quantique hors résonance. C'est la manifestation attendue de l'effet Purcell, qui a tendance à retarder la saturation de l'émission de la boîte quantique en résonance. Notons que le comportement de l'intensité en fonction de la puissance pour ces boîtes quantiques est similaire à celui présenté dans le chapitre 2 pour des boîtes quantiques dans des *mesas*. Le rapport entre les puissances de saturation fournit une estimation du facteur d'exaltation de l'émission spontanée. Pour la figure 4.5, on estime  $F \sim 6$ . Ce résultat est en bon accord avec les mesures effectuées précédemment qui montraient que  $3 \leq F \leq 9$ .

Le comportement en intensité des raies X en résonance avec le mode peut être



décrit en modifiant le modèle présenté en 2.2.2.5. En prenant en compte l'exaltation de l'émission associée à l'exciton, on obtient avec les mêmes notations :

$$\frac{dP(0)}{dt} = F \frac{P(1)}{\tau_r} - \frac{P(0)}{\tau_a} \quad (4.10)$$

$$\frac{dP(1)}{dt} = \frac{P(0)}{\tau_a} + \frac{2P(2)}{\tau_r} - P(1) \left( \frac{1}{\tau_a} + \frac{F}{\tau_r} \right) \quad (4.11)$$

et pour  $n \geq 2$  :

$$\frac{dP(n)}{dt} = \frac{P(n-1)}{\tau_a} + \frac{(n+1)P(n+1)}{\tau_r} - P(n) \left( \frac{1}{\tau_a} + \frac{n}{\tau_r} \right) \quad (4.12)$$

Sans oublier que :

$$I_X(P) = A(F-1) \frac{P(1)}{\tau_r} \quad (4.13)$$

puisque seule une fraction  $(F-1)/F$  des photons est couplée au mode de cavité et bien collectée par notre système de détection. La figure 4.5 présente également les courbes obtenues par résolution numérique de ces équations. Le coefficient de proportionnalité  $B$  entre la puissance d'excitation et  $1/\tau_a$  est pris identique pour toutes les courbes. Dans le cas de la boîte quantique hors résonance, on remplace dans l'équation 4.13 le facteur  $A(F-1)$  par un simple paramètre ajustable, puisque les conditions de collection pour une boîte quantique située au-delà de la *stop-band* sont très différentes. L'accord avec les courbes expérimentales (figure 4.5) est bon, le paramètre  $F$  choisi a pour valeur 6. Cette valeur est tout à fait en accord avec les mesures effectués par spectroscopie résolue en temps.

La figure 4.6 présente un autre micropilier pour lequel ces effets sont plus remarquables.

L'encart de la figure 4.6 présente des spectres d'un micropilier de diamètre  $0.85 \mu\text{m}$  à  $P = 0.15 \mu\text{W}$  et  $P = 400 \mu\text{W}$ . Le mode est situé à  $1.2641 \text{ eV}$  et a une largeur spectrale de  $2,0 \text{ meV}$ , d'où  $Q = 630$  et  $F_p = 13$ . Nous nous concentrerons sur trois boîtes quantiques. La première est située à  $70 \text{ meV}$  au-dessus du mode de cavité, au delà de la *stop-band* des miroirs, et est donc hors résonance avec le mode de cavité. Cette boîte quantique, notée  $R$ , sert de référence pour notre expérience. Son comportement est en effet typique des boîtes quantiques hors résonance. La seconde, notée  $A$ , est spectralement située au centre du mode de la cavité, à  $1.2636 \text{ eV}$ . La troisième, notée  $B$ , est située dans la queue spectrale du mode, à  $1.2669 \text{ eV}$ . La figure 4.6 présente les intensités intégrées de photoluminescence des raies X de ces boîtes quantiques en fonction de la puissance d'excitation, sous excitation continue.

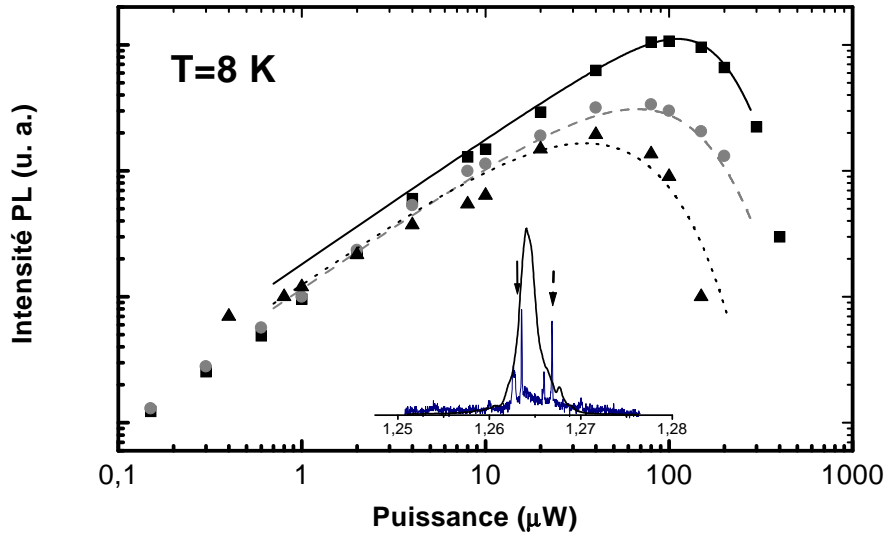


FIG. 4.6 – Evolution des intensités intégrées des raies d'émission en fonction de la puissance d'excitation pour deux boîtes quantiques en résonance avec le mode (symboles *carré* et *cercle*) et une boîte quantique hors résonance (symbole *triangle*) située au delà de la *stop-band* des miroirs. L'encart représente les spectres du micropilier à faible (150 nW) et forte puissance d'excitation (400  $\mu$ W, signal divisé par 600). Les flèches indiquent les boîtes quantiques en question, celle indiquée en trait plein est pratiquement au centre du mode, alors que celle en trait pointillé est dans la queue du mode. La boîte quantique située au centre du mode sature à une puissance d'excitation supérieure aux puissances de saturation des deux autres émetteurs : c'est une conséquence de l'effet Purcell. Les courbes en trait plein, tireté et pointillé sont issues du modèle 4.10, pour des valeurs de  $F$  respectivement égales à 10, 2 et 1.

Là encore, pour une même puissance d'excitation, les intensités associées aux boîtes quantiques en résonance ( $A$  et  $B$ ) sont plus élevées que pour celle hors-résonance ( $R$ ). L'intensité de saturation est maximale pour  $A$ , qui est bien la boîte quantique la mieux couplée au mode.

Il est également clair que l'émission des boîtes quantiques en résonance sature pour des puissances d'excitation supérieures.  $A$  sature à 100  $\mu$ W,  $B$  à 20  $\mu$ W et  $R$  à 10  $\mu$ W. En particulier, pour  $A$ , le comportement linéaire de l'intensité en fonction de la puissance d'excitation s'observe sur une plus grande gamme de puissance que  $B$  et  $R$ . Le rapport entre les puissances de saturation d'une boîte quantique en résonance et de celle hors résonance ( $R$ ) fournit là encore une estimation du facteur d'exaltation  $F$ . On estime ainsi  $F = 10$  pour  $A$  et  $F = 2$  pour  $B$ .  $A$  est située spectralement au maximum d'intensité du mode et le facteur d'exaltation attendu  $F_p + 1$  est égal à 14. Cette différence provient très

vraisemblablement d'un positionnement spatial imparfait de la boîte quantique à l'intérieur de la cavité.  $B$  est spectralement très excentrée par rapport au maximum du mode. Le facteur d'exaltation dans le mode de cavité doit être corrigé d'un facteur  $\rho(E)/\rho(E_{max})$  (voir [76] et équation 4.8). On peut estimer que la courbe  $\rho(E)$  s'apparente au spectre de photoluminescence du mode de cavité. Pour  $B$ , ce facteur est à peu près égal à 0.15 et conduit à un facteur d'exaltation  $F$  égal à 2.9, légèrement supérieur à la valeur trouvée ci-dessus (2).

Les courbes expérimentales sont également approchées par les résultats du modèle 4.10. L'accord entre les deux est assez bon (voir figure 4.6); les paramètres  $F$  obtenus sont de 10 pour  $A$ , 2 pour  $B$  et 1 pour  $R$ .

Nous avons ainsi mis en évidence que l'effet Purcell retarde la saturation des boîtes quantiques en résonance. Les valeurs obtenues pour le facteur d'exaltation par cette mesure sont sensiblement inférieures à celles attendues. Ces différences peuvent provenir du positionnement spatial, non connu, de la boîte quantique à l'intérieur de la cavité. En effet, si l'émetteur n'est pas situé au centre du micropilier, le facteur d'exaltation attendu est plus faible.

#### 4.4.3 Autres démonstrations expérimentales

G. S. Solomon *et al.* [149] reportent également un raccourcissement du temps de vie pour une boîte quantique unique en résonance avec le mode d'un micropilier. Leurs résultats semblent indiquer que la boîte quantique est idéalement placée au centre de la cavité.

Les travaux de A. Kiraz *et al.* [150] mettent en évidence une exaltation de l'émission spontanée d'un facteur 6 pour une boîte quantique en résonance avec le mode de galerie d'un microdisque. Le plus remarquable est qu'ils utilisent le déplacement en température de la raie X de la boîte quantique par rapport au mode pour amener la raie X en résonance. La boîte quantique, hors résonance à 4 K, présente un temps de vie de  $\sim 3$  ns. Lorsqu'elle est amenée en résonance, à 44 K, la boîte quantique voit son émission fortement augmenter et son temps de vie diminuer d'un facteur 6. Pour des températures supérieures, la raie X est à nouveau hors résonance et son temps de vie augmente pour retrouver sa valeur initiale.

## 4.5 Effet Purcell et couplage quasi-monomode de l'émission spontanée

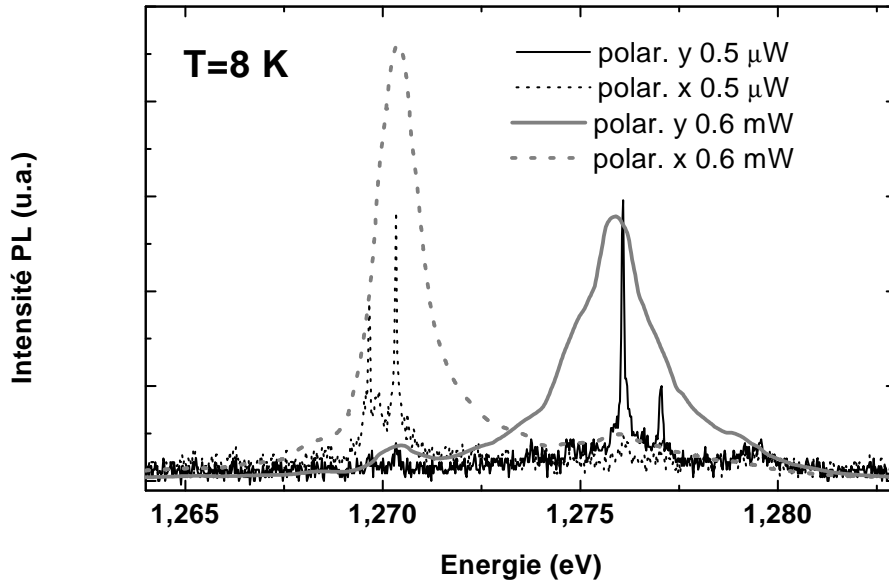


FIG. 4.7 – Spectres résolus en polarisation linéaire pour un micropilier elliptique de grand axe  $1.4 \mu\text{m}$  et de petit axe  $0.71 \mu\text{m}$ , pour des puissances incidentes de  $0.5 \mu\text{W}$  (trait noir fin) et  $0.6 \text{mW}$  (trait gris épais). A forte puissance d'excitation on observe deux modes de polarisations linéaires croisées, provenant de la levée en dégénérescence du mode fondamental avec l'ellipticité du micropilier. A faible puissance d'excitation, les raies X des différentes boîtes quantiques présentent un fort degré de polarisation linéaire, imposé par le mode avec lequel elles sont en résonance.

Nous avons observé des facteurs d'exaltation supérieurs à 3 par microphotoluminescence résolue en temps et de l'ordre de 10 via l'étude de la dépendance de l'émission des boîtes quantiques en fonction de la puissance. Ceci correspond à des valeurs très élevées de  $\beta$ .  $F = 3$  fournit un taux de couplage au mode  $\beta$  égal à 66%. Un tel dispositif permet ainsi, *a priori*, de collecter pratiquement 70% des photons émis. L'effet Purcell permet donc de coupler de façon préférentielle à un mode (ici dégénéré en polarisation) l'émission spontanée de la boîte quantique.

Il peut aussi être utilisé pour contrôler la polarisation des photons émis. L'émission dans un même mode spatial garantit que le train de photons se propagera avec la même vitesse de groupe dans une fibre optique. Le contrôle de la polarisation est également un élément majeur pour la génération de clés quantiques. Les protocoles de cryptographie

quantique basés sur le codage en polarisation (comme BB84) nécessitent la préparation des photons dans un état initial de polarisation.

Pour illustrer ce point, nous présentons figure 4.7 des spectres de photoluminescence résolus en polarisation pour quelques boîtes quantiques placées dans un micropilier de section elliptique, de grand axe  $1.4\ \mu\text{m}$  et de petit axe  $0.71\ \mu\text{m}$ . Cette forme anisotrope induit une biréfringence suffisante pour lever la dégénérescence en polarisation des micropiliers à section circulaire [140]. Ces micropiliers présentent ainsi un doublet de modes fondamentaux polarisés linéairement et de polarisations croisées, comme on peut le voir sur les spectres à forte excitation. A faible excitation, on observe que les raies X des différentes boîtes quantiques présentent également un fort degré de polarisation linéaire (plus de 90% dans les meilleurs cas), correspondant au mode avec lequel elles sont en résonance. Alors que les boîtes quantiques d'InAs dans une matrice de GaAs n'ont pas de polarisation préférentielle dans le plan  $xy$ , la figure 4.7 montre que l'émission de boîtes quantiques en résonance présente un fort degré de polarisation linéaire imposé par leur couplage préférentiel à un mode polarisé.

Ces expériences démontrent que les photons sont bien émis dans un seul et même mode spatial et de polarisation. C'est pourquoi une boîte quantique unique en résonance avec un tel mode constitue bien une source à photons uniques monomode.

## 4.6 Conclusion

Nous avons clairement mis en évidence l'effet Purcell sur des boîtes quantiques uniques, d'une part par des mesures directes de l'exaltation du taux d'émission spontanée et d'autre part par une augmentation de la puissance de saturation des raies X en résonance avec le mode. L'effet Purcell permet également de préparer les photons dans un seul mode de la cavité, de polarisation linéaire. La source de photons uniques ainsi préparée peut réellement être qualifiée de monomode. Notons qu'à ce jour, seules les boîtes quantiques couplées aux micropiliers permettent d'arriver à ce résultat.

Il paraît naturel d'étudier des micropiliers avec un facteur de qualité le plus élevé possible de manière à observer de plus grands effets et à rendre  $\beta$  le plus proche de 1. C'est pourquoi des échantillons avec des micropiliers dont le miroir supérieur est composé de 15 paires de Bragg ont été fabriqués (25 paires pour le miroir inférieur). Des spectres typiques d'un tel micropilier sont présentés figure 4.8.

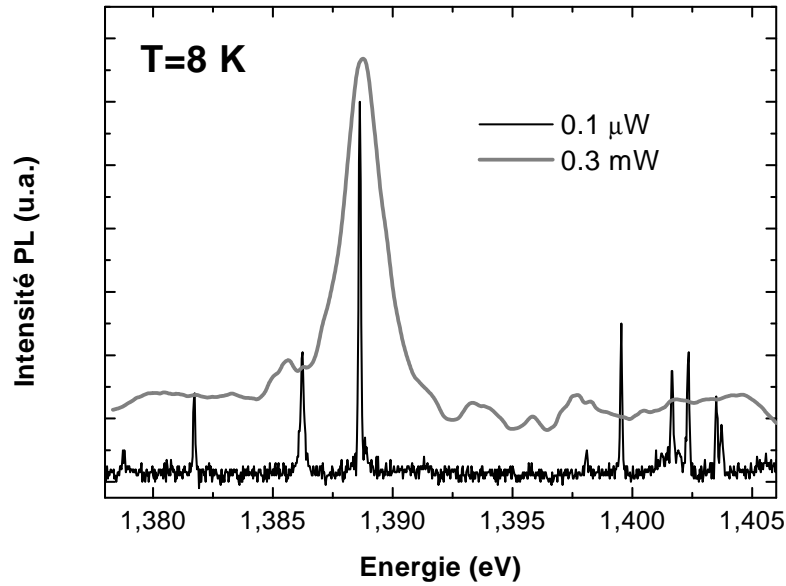


FIG. 4.8 – Spectres d'un micropilier de diamètre  $1\ \mu\text{m}$  à faible ( $0.1\ \mu\text{W}$ ) et forte puissance d'excitation ( $300\ \mu\text{W}$ , signal divisé par 500). Les boîtes quantiques hors résonance ont une intensité comparable aux boîtes en résonance. Pourtant les boîtes quantiques en résonance sont *a priori* bien mieux couplées au mode de cavité que celles hors résonance. Cette observation implique qu'il existe pour les photons une voie d'échappement supplémentaire hors de la cavité.

La figure 4.8 présente le spectre d'un micropilier à faible puissance d'excitation. Seules les raies X des différentes boîtes quantiques sont présentes. Sur cette figure, les boîtes quantiques hors-résonance ont une intensité comparable à celles qui sont en résonance. Or le facteur de qualité de ce micropilier et sa taille conduisent à un coefficient de couplage de l'émission spontanée au mode  $\beta$  de l'ordre de 0.95. Les photons émis par les boîtes quantiques en résonance devraient ainsi être redirigés quasi-intégralement dans la direction normale aux miroirs et être très bien collectés par notre système expérimental. À l'inverse, les photons émis par les boîtes quantiques hors résonance s'échappent par les modes de fuite des micropiliers (par les flancs de la structure) et sont très mal collectés par notre système expérimental, étant donnée son ouverture numérique limitée ( $NA = 0.4$ ).

Cette observation implique qu'il existe pour les photons en résonance une autre voie d'échappement qu'à travers le miroir supérieur. Il faut par conséquent analyser plus en détail les pertes intrinsèques et extrinsèques de la cavité. En particulier, les rugosités de flancs des micropiliers, apparaissant lors de la gravure, créent une voie d'échappement supplémentaire pour les photons (en plus d'abaisser  $Q$ ) [151, 152, 153]. Il faut alors intro-

duire une nouvelle grandeur ( $\beta_u$ ) qui rend compte des photons réellement collectés par le haut de la cavité, qui se distingue du taux de couplage de l'émission spontanée au mode  $\beta$ .

Dès lors, l'approche consistant à maximiser le facteur de Purcell pour obtenir des valeurs de  $\beta$  les plus proches de l'unité devient caduque. Il faut désormais maximiser le taux de collection utile des photons  $\beta_u$ . L'objet de la partie suivante est ainsi de définir sans ambiguïté  $\beta_u$  et de rechercher les paramètres optimaux des micropiliers pour rendre  $\beta_u$  le plus proche de 1. Nous verrons que l'optimisation du taux de collection utile des photons dans le mode est le résultat d'un compromis entre la recherche d'un petit volume de cavité (pour maximiser  $F_p$  et  $\beta$ ) et des pertes par diffusion aussi faibles que possible. Enfin, nous estimerons le taux de collection maximum atteignable en utilisant des micropiliers gravés à l'état de l'art actuel.

## Chapitre 5

# Optimisation et caractérisation d'une source de photons uniques monomode

Ce chapitre a pour objet d'optimiser les paramètres de notre source à photons uniques. Nous avons en effet vu dans la partie 1.3 qu'une efficacité de collection élevée alliée à un  $g^{(2)}(0)$  très faible est un élément majeur pour les différentes applications. Dans cet esprit nous comparons quantitativement nos boîtes quantiques uniques en microcavité à d'autres types de sources de photons uniques.

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'*a priori* le taux de collection des photons dans un mode unique augmentait avec le facteur de Purcell du micropilier. Cette condition entraînait l'utilisation de micropiliers de faible diamètre et comportant de nombreuses paires de Bragg afin de maximiser le facteur de Purcell. Cependant, à la fin du chapitre précédent, nous avons vu que des rugosités de flancs de nos microcavités, apparaissant lors de la gravure, causaient une voie d'échappement supplémentaire pour les photons [151, 152, 153]. Ce défaut doit être étudié afin de définir un taux de collection utile des photons et d'optimiser les paramètres des microcavités. L'optimisation du taux de collection utile des photons dans le mode est alors le résultat d'un compromis entre la recherche d'un grand facteur de Purcell et la dégradation des flancs du micropilier; ce point constituera l'objet de la première partie de ce chapitre.

Nous commençons donc par analyser les différentes pertes des micropiliers pour définir une efficacité de collection utile des photons. Ceci nous permet d'optimiser les



propriétés des micropiliers. Nous présentons alors les caractéristiques d'une source à un photon réalisée en plaçant une boîte quantique unique en résonance avec un micropilier (résultats publiés dans [47]). Ses performances sont comparées aux lasers atténués utilisés pour les expériences de cryptographie quantique ainsi qu'à d'autres types de sources de photons uniques.

Dans la deuxième partie de ce chapitre nous nous intéressons à une autre limite d'utilisation de notre source à un photon, à savoir la température. Des expériences d'auto-corrélation sur une boîte quantique unique en résonance avec le mode d'un micropilier sont réalisées à différentes températures. Ces résultats laissent espérer un fonctionnement des sources à un photon fabriquées à partir de boîtes quantiques au delà de 77 K.

## 5.1 Optimisation des paramètres du micropilier pour l'application source à un photon

### 5.1.1 Pertes intrinsèques et extrinsèques de la cavité

L'approche présentée jusqu'ici nous incitait à étudier des micropiliers avec un facteur de Purcell le plus élevé possible, de manière à maximiser  $\beta$ . Deux effets concourent *a priori* à un  $F_p$  élevé : une haute finesse de la cavité planaire  $Q_0$  et un faible volume de cavité  $V$ . Cette démarche ne tient cependant pas totalement compte des pertes additionnelles, extrinsèques et intrinsèques, de la cavité. C'est ce dont nous allons parler ci-après.

La première cause de perte, de type intrinsèque, est liée à la réflectivité finie du miroir inférieur. Nous avons vu qu'en pratique, ces pertes intrinsèques peuvent être fortement atténuées en ajustant le nombre de paires de Bragg de chaque miroir. Pour le micropilier présenté en figure 4.2, le coefficient de transmission du miroir supérieur (7%), composé de 9 paires est bien supérieur au coefficient de transmission du miroir inférieur (0.1%) composé de 25 paires. La transmission par le miroir supérieur est donc la voie d'échappement intrinsèque dominante.

Les pertes extrinsèques et, en premier lieu, la diffusion induite par les rugosités de flanc du micropilier sont plus difficiles à contrôler. Les rugosités de flancs du micropilier, induites lors de la gravure, couplent les modes confinés aux modes propagatifs et permettent ainsi aux photons de s'échapper par une voie supplémentaire, faiblement collectée par notre système [151, 152, 153]. Cet effet est souligné par l'étude du facteur de qualité

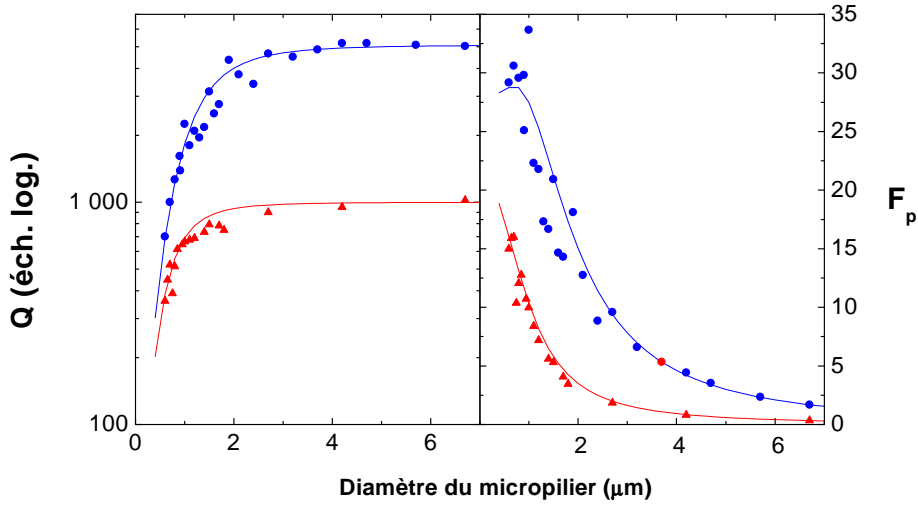


FIG. 5.1 – Facteurs de qualité  $Q$  (partie gauche) et facteurs de Purcell  $F_p$  (partie droite) pour deux séries de micropiliers en fonction de leur diamètre. La série de micropiliers représentés par le symbole *triangle* (respectivement *cercle*) est issue d'une même cavité planaire de facteur de qualité  $Q_0 = 1000$  (respectivement  $Q_0 = 5000$ ). Sur la partie gauche les courbes en trait plein sont calculées à partir du modèle de Rivera *et al.* [138]. Sur la partie droite les courbes en trait plein sont simplement des guides pour les yeux. Le facteur de qualité chute brutalement pour de faibles diamètres. Cette chute est moins importante et apparaît pour des diamètres plus petits pour  $Q_0 = 1000$ .

$Q$  en fonction de la taille du micropilier (voir figure 5.1). Les deux séries de micropiliers étudiés possèdent un miroir inférieur composé de 25 paires de Bragg et diffèrent par la taille de leur miroir supérieur. Ainsi, les facteurs de qualité  $Q_0$  des cavités planaires dont ils sont issus sont différents; nous étudions un échantillon “haute finesse” (15 paires et  $Q_0 = 5000$ ) et un échantillon “basse finesse” (9 paires et  $Q_0 = 1000$ ). L'émission des boîtes quantiques sous forte excitation est utilisée pour sonder les modes des micropiliers par photoluminescence. Ces expériences d'optique peuvent être qualifiées de passives dans le sens où aucun effet direct d'électrodynamique quantique n'est observé. En particulier, l'absorption introduite par les boîtes quantiques est suffisamment faible pour ne pas perturber la valeur de  $Q$  du micropilier “vide”. Ces émetteurs constituent simplement une source de lumière “blanche” pour l'étude des microcavités [8, 28].

Pour des diamètres élevés,  $Q$  est constant, à peu près égal au facteur de qualité  $Q_0$  de la cavité planaire. En-dessous d'un certain diamètre critique, une dégradation de  $Q$  est observée. Ceci montre que le temps de vie du photon dans la cavité (qui est proportionnel à  $Q$ ) diminue à cause de l'apparition d'une nouvelle voie d'échappement. Lorsque les mi-

cropiliers sont partiellement gravés, la diffraction par le pied du micropilier peut entraîner de telles pertes additionnelles [152]. Quand toute la structure est gravée, ces pertes additionnelles sont causées par les rugosités de flancs. L'effet de ces rugosités de flancs croît lorsque la taille du micropilier diminue. Pour les plus petits piliers ( $d < 1.5 \mu\text{m}$ ), les pertes extrinsèques sont le mécanisme dominant d'échappement des photons. La chute du facteur de qualité  $Q$  pour la série  $Q_0 = 1000$  est moins brutale que pour la série  $Q_0 = 5000$  et apparaît pour des diamètres plus faibles. Ainsi, des facteurs de qualité  $Q$  identiques sont obtenus pour des mêmes tailles de piliers et indépendamment du  $Q_0$  de la cavité planaire, parce que les deux séries de micropiliers ont des rugosités de flanc similaires. Le comportement expérimental de  $Q$  en fonction de la taille des micropiliers est bien décrit par un modèle simple [138]. Celui-ci suppose que la probabilité de diffusion est proportionnelle à l'intensité du mode à la surface du micropilier.

Un deuxième type de pertes intrinsèques, existant également pour les cavités planaires, affecte aussi les micropiliers ; il s'agit des pertes par absorption ou par diffusion par rugosité d'interface. Ce dernier mécanisme est négligeable car les rugosités d'interface sont de l'ordre de quelques monocouches atomiques, donc très petites à l'échelle de la longueur d'onde. L'échelle latérale est petite ce qui interdit également une structuration éventuelle de la surface (de type réseau). Pour les microcavités planaires GaAs/AlAs, les valeurs les plus élevées de  $Q$  connues sont de 11000 par croissance MBE [154] et 11600 par croissance MOCVD [153]. Une absorption résiduelle des couches de la microcavité doit être prise en compte pour expliquer ces valeurs [153, 154].

Enfin, même dans un miroir de Bragg parfait il existe des pertes intrinsèques dues au *mode matching* entre l'AlAs et le GaAs. En effet, à chaque interface AlAs/GaAs, un mode guidé ne se couple pas uniquement au même mode guidé dans l'autre matériau. Ce type de pertes intrinsèques reste cependant négligeable pour les micropiliers étudiés, car elles n'apparaissent qu'en dessous de  $1 \mu\text{m}$  de diamètre.

### 5.1.2 Définition d'un taux de collection utile des photons

Pour une microcavité à faibles pertes,  $1/Q$  peut s'écrire comme la somme de termes rendant chacun compte des différents mécanismes de pertes, à savoir : pertes intrinsèques dues à la réflectivité finie des miroirs, diffusion par les rugosités de flancs et absorption

résiduelle.  $1/Q$  s'écrit donc :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{int}} + \frac{1}{Q_{pertes}} + \frac{1}{Q_{abs}} \quad (5.1)$$

En supposant une transmission par le miroir inférieur négligeable, nous estimons la proportion de photons émis dans le mode de cavité et sortant à travers le miroir supérieur :

$$\beta_u = \frac{1/Q_{int}}{1/Q} \beta = \beta \left( 1 - \frac{Q}{Q_{pertes}} - \frac{Q}{Q_{abs}} \right) \quad (5.2)$$

$Q/Q_0$  représente donc un facteur correctif par rapport à la collection des photons par un micropilier de facteur de qualité idéal  $Q_0$ , pour lequel  $\beta$  et  $\beta_u$  s'identifient.

Une analyse des données expérimentales présentées figure 5.1 permet d'estimer la contribution des pertes intrinsèques et extrinsèques. Tout d'abord, les pertes dues à l'absorption résiduelle sont les mêmes pour la cavité planaire et les micropiliers. Une modélisation utilisant la méthode des matrices de transfert montre que  $Q_{abs}$  est de 30000 pour nos microcavités haute finesse [153, 154]. Ensuite,  $Q_{pertes}$  peut être facilement estimée à partir de  $Q$  et  $Q_0$  :

$$\frac{1}{Q_{pertes}} = \frac{1}{Q} - \frac{1}{Q_0} \quad (5.3)$$

Nous modélisons ce terme de pertes de la même manière que Rivera *et al.* [138] :

$$\frac{1}{Q_{pertes}} = \epsilon \frac{|\vec{E}(d)|^2}{d} \quad (5.4)$$

où  $|\vec{E}(d)|^2$  est l'intensité du champ électromagnétique aux bords du micropilier,  $d$  est le diamètre du micropilier et  $\epsilon$  un paramètre phénoménologique qui rend compte de la rugosité des flancs gravés. Plus  $\epsilon$  est faible, meilleure est la qualité de la gravure. Le champ électromagnétique à l'intérieur du micropilier peut être calculé à partir des équations de Maxwell. Comme on le voit sur la courbe 5.1, ce modèle décrit très bien la dépendance du facteur de qualité avec le diamètre des micropiliers.

Les facteurs de Purcell pour ces deux séries de micropiliers, estimés à partir des mesures de  $Q$ , sont présentés sur la partie droite de la figure 5.1. Pour la série haute finesse,  $F_p$  atteint des valeurs autour de 30 pour des diamètres de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ . Par conséquent, des valeurs de  $\beta$ , calculées en utilisant la définition 4.7, très proches de l'unité sont obtenues pour ces micropiliers (voir figure 5.2). Remarquons toutefois que  $\beta$  n'atteint pas 1 dans la limite des faibles diamètres puisque  $F_p$  a son maximum pour des diamètres de  $\sim 1 \mu\text{m}$ . Des valeurs élevées pour  $\beta$  sont ainsi obtenues malgré une forte dégradation de  $Q$  causée par les rugosités de flancs.

Par contre, cet effet joue un rôle beaucoup plus important pour  $\beta_u$ , calculé en utilisant l'équation 5.2. Alors que  $\beta$  atteint des valeurs très proches de l'unité pour des micropiliers de diamètre inférieur à  $2 \mu\text{m}$ ,  $\beta_u$  ne dépasse pas 0.7 et chute même jusqu'à 0.1 pour le micropilier de  $0.8 \mu\text{m}$  de la série  $Q_0 = 5000$ . Comme les pertes intrinsèques sont faibles ( $Q_0$  élevé), les pertes additionnelles dues à la diffusion par les flancs deviennent dominantes pour des diamètres inférieurs à  $3 \mu\text{m}$ . Il devient ainsi préjudiciable de réduire davantage la taille des micropiliers. Dans le cas présent, une valeur maximale pour  $\beta_u$  de 70% est obtenue autour de  $d = 3 \mu\text{m}$  pour ces micropiliers à haut facteur de qualité.

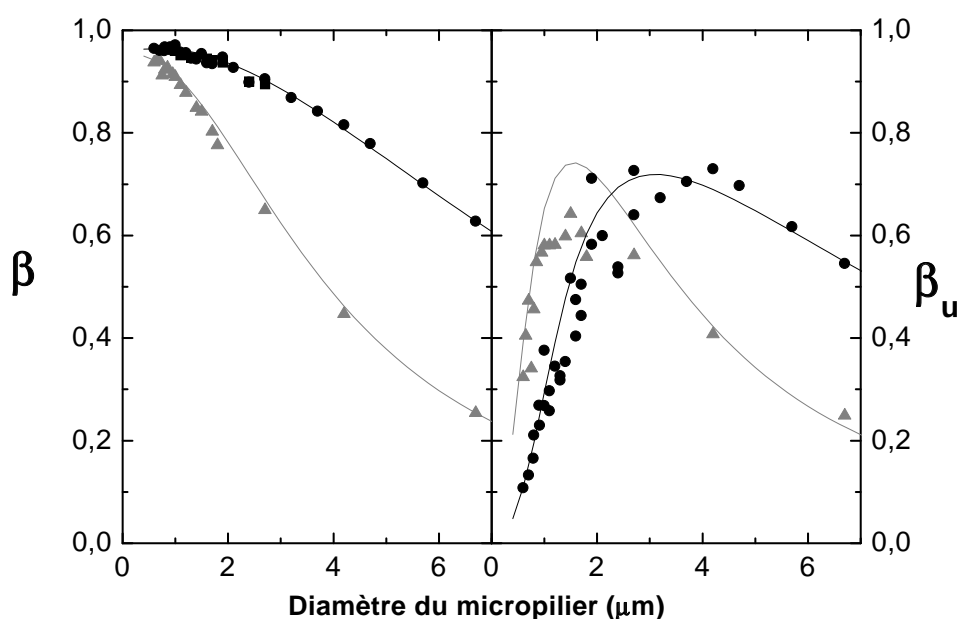


FIG. 5.2 – Fraction  $\beta$  des photons couplée au mode de cavité (partie gauche) et fraction utile des photons collectés  $\beta_u$  (partie droite) pour deux séries de micropiliers en fonction de leur diamètre. La série de micropiliers représentés par le symbole *triangle* (respectivement *cercle*) est issue d'une même cavité plane de facteur de qualité  $Q_0 = 1000$  (respectivement  $Q_0 = 5000$ ). Les courbes en trait plein sont simplement des guides pour les yeux. Alors que  $\beta$  est très proche de l'unité pour des micropiliers de faible taille,  $\beta_u$  est beaucoup plus faible à cause des pertes induites par les rugosités de flanc. Les micropiliers issus de la cavité plane pour laquelle  $Q_0 = 1000$  ont un maximum de  $\beta_u$  similaire à la série  $Q_0 = 5000$ , atteint pour un diamètre plus petit ( $1.5 \mu\text{m}$  au lieu de  $3 \mu\text{m}$ ).

### 5.1.3 Nouvelle approche pour accroître la collection des photons

Jusqu'à présent, la plupart des efforts pour les boîtes quantiques en micropiliers portait sur la maximisation de l'amplitude de l'effet Purcell (et par conséquent de  $\beta$ ). Il

est clair que cette approche n'est plus pertinente dès que l'on s'intéresse à l'efficacité de collection  $\beta_u$  de notre source à un photon, et ce pour deux raisons. Premièrement, cette approche a tendance à favoriser les cavités de faible volume, pour lesquelles les pertes par diffusion par les flancs sont les plus importantes. Deuxièmement, les cavités planaires de haute finesse sont préférées, puisqu'une valeur de  $Q_0$  élevée contribue à réduire les pertes. Cependant cela accroît le rôle relatif des pertes par rugosités de flancs et par absorption comparées aux pertes intrinsèques.  $\beta_u$  présente un maximum qui résulte d'un compromis entre une réduction du volume de la cavité et une dégradation de  $Q$ , conséquences de la réduction du diamètre du micropilier. Le diamètre optimal correspond grossièrement à la taille en dessous de laquelle  $Q$  chute dramatiquement.

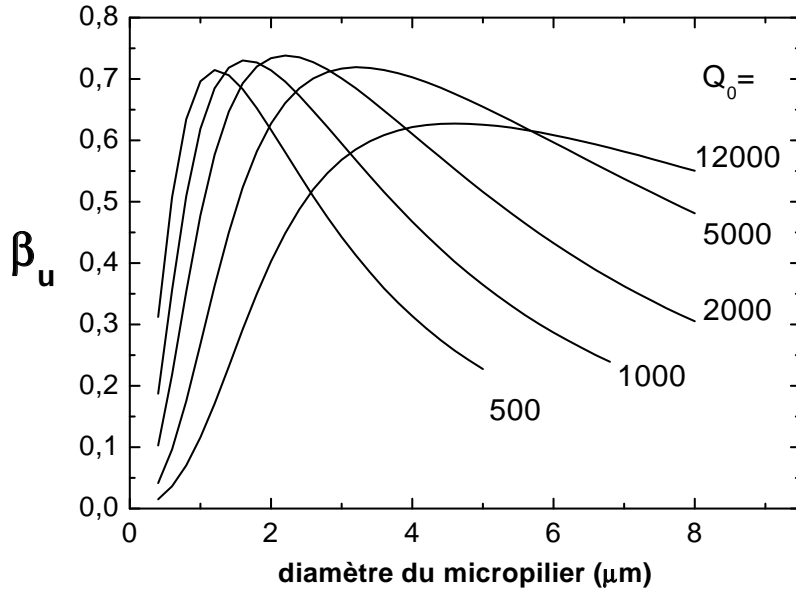


FIG. 5.3 – Estimation théorique du taux de collection utile des photons  $\beta_u$  en fonction du diamètre des micropiliers pour différentes valeurs des pertes intrinsèques de la cavité (c'est à dire  $Q_0$ ). Nous supposons une rugosité de flancs (à l'état de l'art actuel) constante et prenons 30000 pour valeur de  $Q_{abs}$ . La valeur maximale de  $\beta_u$  dépend assez peu de  $Q_0$  et reste au-delà de 0.7 quand  $Q_0$  varie entre 500 et 5000.

Nous présentons figure 5.3 une estimation théorique de  $\beta_u$  comme fonction du diamètre du micropilier pour différentes valeurs des pertes intrinsèques de la cavité (ou  $Q_0$ ). Nous supposons que les pertes par absorption sont constantes ( $Q_{abs} = 30000$ ) ainsi que les rugosités de flancs. Cette hypothèse est confirmée par les valeurs de  $\epsilon$  similaires observées pour nos deux séries de micropiliers ( $\epsilon \sim 0.06$ ). Ces hypothèses correspondent aux meilleurs résultats publiés non seulement pour le système GaAs/AlAs, mais aussi pour

tous les micropiliers à base de matériaux semi-conducteurs.

Dans tous les cas,  $\beta_u$  présente toujours la même dépendance en fonction du diamètre du micropilier  $d$ , mais le diamètre  $d$  optimal dépend fortement de  $Q_0$ . Comme attendu, il augmente avec  $Q_0$ , puisque les microcavités haute finesse sont plus sensibles aux pertes additionnelles. La valeur la plus élevée de  $\beta_u$  (0.73) est obtenue pour  $Q_0 \sim 2000$  et  $d \sim 2 \mu\text{m}$ . De façon assez remarquable, la valeur maximale de  $\beta_u$  dépend assez peu de  $Q_0$  et reste au-delà de 0.7 quand  $Q_0$  varie entre 500 et 5000. Ce comportement permet de choisir (si nécessaire) le diamètre du micropilier sans compromettre l'efficacité de collection  $\beta_u$  de notre source. C'est un point intéressant, car en pratique la réduction du diamètre du micropilier est l'approche la plus utilisée pour réduire le nombre de boîtes quantiques présentes dans la microcavité jusqu'à l'unité.

Nous avons ainsi démontré que pour maximiser la fraction utile des photons collectés il ne faut pas nécessairement utiliser des micropiliers de très haut facteur de qualité mais trouver un compromis entre ce facteur de qualité et les pertes induites par les rugosités de flanc. Avec cette série de micropiliers ( $Q_0 = 1000$ ), une fraction utile des photons collectée de 0.7 a été estimée pour des micropiliers de diamètre  $1 \mu\text{m}$ .

Nous présentons dans la suite l'étude de micropiliers de petit diamètre obtenus pour  $Q_0 = 1000$ . Ces structures sont proches de l'optimum en ce qui concerne  $\beta_u$ , et permettent par ailleurs d'isoler un petit nombre de boîtes quantiques dans le micropilier comme nous l'avons vu figure 4.3. Nous caractérisons dans la section suivante la source de photons uniques obtenue par spectroscopie de microphotoluminescence et par des expériences d'auto-corrélation.

## 5.2 Caractérisation d'une source solide monomode de photons à boîtes quantiques

Dans cette section, nous présentons les premiers résultats, également publiés dans [47], sur une source à un photon réalisée en plaçant une boîte quantique unique en résonance avec un micropilier. Nous comparons ensuite son efficacité de collection avec d'autres systèmes de collection utilisés à l'heure actuelle.

L'échantillon considéré est le même que précédemment (micropiliers issus d'une même cavité planaire de  $Q_0 = 1000$ ). Les boîtes quantiques uniques à l'intérieur de la microcavité ont leur maximum d'émission à 1.31 eV avec une largeur à mi-hauteur de

60 meV. Pour isoler une seule boîte quantique unique, nous avons utilisé la méthode, décrite dans la partie 4.4.1, de décalage spectral entre le mode de cavité et le maximum d'émission de la photoluminescence des boîtes quantiques.

### 5.2.1 Auto-corrélation de photons

Le micropilier étudié a pour diamètre  $0.9 \mu\text{m}$  et voit son mode fondamental situé à 1.2628 eV (voir figure 4.3). Cette boîte quantique ( $BQ_{cav}$ ) a déjà été étudiée par spectroscopie résolue en temps et par des expériences de microphotoluminescence en fonction de la puissance d'excitation (voir chapitre 4). A basse excitation, on distingue la raie X d'une boîte quantique à 1.2626 eV (deux autres raies X nettement moins intenses sont également présentes en bordure du mode mais sont suffisamment séparées spectralement pour considérer que l'on a affaire à une seule boîte quantique). Cette boîte quantique dont l'émission se fait pratiquement au centre du mode de cavité constitue notre source à un photon. Des expériences d'auto-corrélation sous excitation pulsée ont été conduites sur cet émetteur. La puissance d'excitation est de  $1 \mu\text{W}$ , ce qui correspond à  $0.3P_{sat}$  (mêmes notations que dans le chapitre 3.1). La durée d'accumulation de l'expérience est de 121 min et le flux de photons sur les photodiodes est de  $N_1 = 6800$  coups/s et  $N_2 = 2900$  coups/s. L'histogramme de corrélation est corrigé des coups noirs des photodiodes puis normalisé selon la procédure déjà décrite.

Le pic central de la fonction d'auto-corrélation est nettement atténué (voir figure 5.4), avec  $g^2(0) < 0.5$  ce qui prouve que les photons sont bien émis par un émetteur unique.  $g^2(0) = 0.16$ , ce qui signifie que cet émetteur a une probabilité 6.2 fois plus faible qu'une source cohérente d'émettre plus d'un photon par impulsion. Cette valeur est supérieure à celle obtenue pour les boîtes quantiques uniques incluses dans des *mesas*. La raison de cette valeur non nulle provient d'un signal de fond non négligeable. Ce signal résiduel est attribué à l'émission provenant d'autres boîtes quantiques. Ces boîtes quantiques ont leur émission principale à une longueur d'onde autre que celle du mode de cavité mais ont toutefois une contribution sur un spectre plus large.  $g^2(0)$  se dégrade d'ailleurs rapidement avec la puissance d'excitation, preuve que d'autres émetteurs voient leur contribution augmenter. En utilisant des échantillons avec des densités de boîtes quantiques plus faibles, une diminution de  $g^2(0)$  est très certainement envisageable.

La fonction d'auto-corrélation des pics voisins est théoriquement égale à 1. Les valeurs mesurées, distribuées autour de 1, sont compatibles avec un écart statistique de



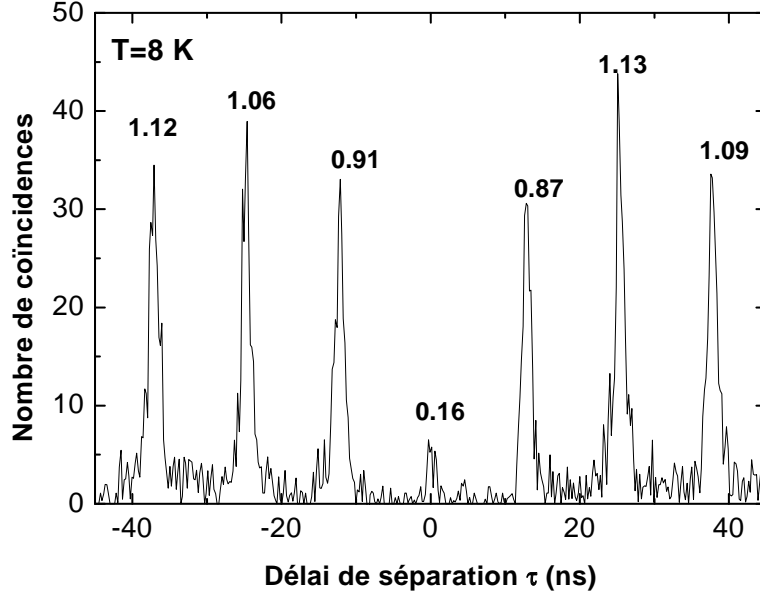


FIG. 5.4 – Histogramme des coïncidences enregistré pour la raie X d'une boîte quantique unique ( $BQ_{cav}$ ) placée en résonance avec le mode d'un micropilier. La puissance incidente est de  $0.3P_{sat}$ . Les nombres au-dessus des pics indiquent les valeurs de la fonction d'auto-corrélation du second ordre pour ces mêmes pics. La faible valeur de  $g^{(2)}(0)$ , alliée à un taux de collection utile des photons satisfaisant, indique que notre source à un photon est déjà plus performante que les lasers atténués utilisés en cryptographie quantique.

type poissonien.

### 5.2.2 Estimation de $\beta_u$

La largeur des pics voisins est bien plus faible que dans les expériences d'auto-corrélation avec des boîtes quantiques incluses dans des *mesas*. Cette faible largeur des pics indique un raccourcissement du temps de recombinaison radiatif de l'exciton, ce qui est la signature de l'effet Purcell pour une boîte quantique en résonance avec le mode d'un micropilier. La largeur à mi-hauteur du pic indique un temps de vie pour l'exciton de  $\sim 500$  ps. Cette valeur est similaire aux 400 ps mesurées de manière directe (voir chapitre 4), voisine de la résolution temporelle du montage. Si on suppose que cette boîte quantique a un temps de vie typique de 1.5 ns hors résonance, le facteur d'exaltation correspondant est supérieur à 3.

Le facteur de qualité du micropilier est de  $Q = 450$  et son diamètre de  $0.9 \mu\text{m}$ . Le facteur de Purcell correspondant est de  $F_p = 8.3$ . Ce micropilier est circulaire; le

mode fondamental est donc dégénéré deux fois en polarisation et le facteur d'exaltation de l'émission spontanée vaut  $F = 2F_p/2+1 = 9$ . Cette valeur est une borne supérieure puisque la position de la boîte quantique à l'intérieur de la cavité est inconnue. Spectralement, la boîte quantique émet pratiquement au centre du mode. Comme  $Q_0 = 1000$ , le taux de collection utile des photons pour cette boîte quantique est de :

$$\beta_u = \frac{Q}{Q_0} \frac{F-1}{F} \quad (5.5)$$

On peut estimer une fourchette pour  $\beta_u$  en prenant comme borne supérieure la valeur théorique attendue pour  $F$  pour une boîte quantique idéalement placée et comme borne inférieure celle donnée par la valeur expérimentale de  $F$ . Cette dernière constitue une limite inférieure à cause de la résolution limitée du système expérimental. On obtient ainsi :

$$0.3 \leq \beta_u \leq 0.5 \quad (5.6)$$

Ce taux de collection est à comparer avec celui d'une boîte quantique dans une matrice de GaAs. A cause de la forte différence d'indice entre le GaAs et l'air, une grande partie de la lumière est réfléchiée par réflexion interne à l'interface. Moins de 3% des photons sont émis hors du matériau. De plus, la lumière émergeant du matériau est quasi-omnidirectionnelle, si bien que seulement une fraction de celle-ci se situe dans l'ouverture numérique du système de collection. C'est la raison pour laquelle, en pratique, les taux de collection reportés sont inférieurs à 1%.

Une solution, autre que l'utilisation de microcavités, pour améliorer l'efficacité de collection consiste à placer une lentille à immersion solide à la surface du matériau. Cet objet est simplement une petite sphère d'indice de réfraction très élevé avec un côté plan poli. Cette approche est largement discutée par Barnes *et al.* [117]. Ces lentilles sont tout d'abord apparues dans le domaine de la microscopie [155] et leur potentiel pour coupler efficacement la lumière à partir d'une source ponctuelle est désormais reconnu [156]. Les meilleures géométries de lentilles, associées à des objectifs de collection de grande ouverture ( $NA \sim 0.4$ ), permettent théoriquement un taux de collection de  $\sim 30\%$ .

Ainsi les micropiliers présentent potentiellement une efficacité de collection meilleure que les lentilles à immersion solide. De plus, les micropiliers permettent de concentrer les photons dans un seul mode électromagnétique, non dégénéré en polarisation, ce qui n'est pas le cas des lentilles à immersion.

Toutefois cette valeur (30–40% des photons collectés) n'est pas une mesure directe faite sur les photons. Rappelons que c'est à partir des facteurs de qualité  $Q$  et  $Q_0$ , tous les

deux mesurés, qu'est calculé  $\beta_u$  le taux de collection utile des photons. La partie suivante est consacrée à une mesure expérimentale directe de la fraction utile des photons collectés.

### 5.2.3 Détermination expérimentale de $\beta_u$

Pour estimer le flux de photons généré par notre source de photons uniques monomode, nous avons étalonné la réponse de notre système de collection. Pour cet étalonnage, nous utilisons un puits quantique d'InGaAs dont l'émission à 8 K est centrée à 1.238 eV (1002 nm) avec une largeur à mi-hauteur de 12 meV. Cette valeur est très proche de la fréquence d'émission de notre source (1.263 eV), si bien que la réponse des différents éléments optiques est identique pour les deux émetteurs. Un filtre RG Schott 1000 est inséré à la sortie de l'objectif de microscope dans le but de supprimer la luminescence du GaAs et les photons émis par le laser. Seule l'émission du puits quantique est conservée, comme on le vérifie sur des spectres de microphotoluminescence. L'intensité lumineuse du signal est mesurée juste après le filtre avec deux puissance-mètres différents (Advantest TQ82017 et PHIR Nova). Les mesures sont relativement imprécises ( $\sim 25\%$  d'erreur) et les valeurs obtenues par les deux puissance-mètres sont comparables, à ces incertitudes expérimentales près. Cette mesure nous permet d'avoir une estimation du nombre de photons arrivant sur notre système de détection (monochromateur et photodiode). La comparaison avec le nombre de coups détectés conduit à une efficacité de collection et de détection égale à  $1.4 \pm 0.4 \times 10^{-3}$  à la sortie de l'objectif de microscope. La transmission à travers celui-ci est mesuré en utilisant le faisceau laser (1.53 eV), ce qui donne une valeur de 0.8. Ainsi l'étalonnage fournit une efficacité de collection et de détection totale  $\eta_{cal}$  égale à  $1.1 \pm 0.4 \times 10^{-3}$ .

Ensuite, nous estimons le taux de collection des photons émis par notre boîte quantique (toujours  $BQ_{cav}$ ) dans le micropilier. Nous avons vu que sous forte excitation plus d'une paire électron-trou est créée en moyenne par impulsion dans la boîte quantique, et que leur recombinaison conduit à un et un seul photon X. C'est le régime où la raie X sature avec la puissance d'excitation. Sous ces conditions, le nombre de photons X émis par seconde par la boîte quantique est donc égal à la fréquence de répétition du laser, 82 MHz. La comparaison avec le nombre total de photons détectés à la saturation de la boîte quantique donne une valeur pour l'efficacité de collection  $\eta_{BQ}$  des photons émis par notre source égale à  $4.8 \pm 0.4 \times 10^{-4}$ . Cette valeur est en fait légèrement surestimée car elle contient le bruit de fond associé aux paires de photons obtenues dans l'expérience d'auto-

corrélation précédente. A partir de la valeur de  $g^2(0)$  (0.16), on retrouve le niveau de bruit et le signal associé à l'émission d'un photon unique (voir partie 3.1.4.2). On obtient ainsi  $\eta'_{BQ} \sim 4.3 \pm 0.4 \times 10^{-4}$ . Le rapport  $r = \eta'_{BQ}/\eta_{cal} \sim 0.39$  est la fraction des impulsions, émises par la boîte quantique dans le micropilier, contenant un photon. Cette valeur est en bon accord avec celle de  $\beta_u$  obtenue par mesure des facteurs de qualité  $Q$  et  $Q_0$ . Notons que cette valeur est à peu près 60 fois supérieure à celle obtenue pour les boîtes quantiques dans les *mesas* (*mesas* simples, non situés sur un miroir d'or).

### 5.3 Comparaison avec les lasers atténués

Les protocoles de cryptographie quantique sont actuellement validés en utilisant des lasers atténués comme source [40, 41]. Pour estimer les performances de notre source à un photon, nous allons comparer ses caractéristiques à un tel émetteur laser. Dans la suite nous noterons  $P(n)$  la probabilité qu'une impulsion contienne exactement  $n$  photons.

Rappelons que l'état quantique de la lumière émise par un laser est un état cohérent. La distribution statistique des photons  $P(n)$  pour un tel état est poissonnienne. Par conséquent, les lasers sont utilisés à très faible puissance afin que la probabilité qu'une impulsion contienne plus d'un photon ( $P(n > 1)$ ) soit très faible comparée à  $P(1)$ . L'inconvénient qui en résulte est que la majorité des impulsions ne contiennent aucun photon. Ainsi pour une expérience typique de cryptographie quantique,  $P(0) \sim 89\%$ ,  $P(1) \sim 10\%$  et  $P(n > 1) \sim 1\%$ . La probabilité qu'une impulsion contienne plus d'un photon sachant qu'elle en contient au moins un est tout de même égale à près de 10%.

Notre source à un photon, réalisée en plaçant une boîte quantique unique à l'intérieur d'une micropilier, présente une probabilité  $P(1)$  d'émettre un photon par impulsion égale à  $\sim 0.39$  et un  $g^2(0)$  égal à 0.16. Ainsi, pour notre source,  $P(0) = 59.8\%$ ,  $P(1) = 39\%$  et  $P(n > 1) = 1.2\%$ <sup>1</sup>. Notre source est ainsi plus performante qu'un laser atténué puisque moins d'impulsions vides sont délivrées ainsi que moins d'impulsions contenant plus d'un photon. A titre indicatif, un laser atténué ne peut atteindre, de par sa statistique poissonnienne, le même facteur de remplissage des impulsions ( $P(1) = 0.39$ ).

Rappelons qu'il est important que  $P(0)$  et  $P(n > 1)$  soient les plus faibles possibles. Des valeurs élevées de  $P(n > 1)$  ne garantissent plus le principe d'inviolabilité de la cryptographie quantique, car un espion peut exploiter les photons excédentaires. Dans la

---

<sup>1</sup>Pour de faibles flux  $g^{(2)}(0)$  s'identifie à  $2P(n > 1)/P(1)^2$

	$P(0)$	$P(1)$	$P(n > 1)$
laser atténué typique	0.9	0.1	0.01
source à un photon réalisée	0.6	0.39	0.01
source à un photon à l'état de l'art	0.3	0.7	0
source à un photon idéale	0	1	0

TAB. 5.1 – Comparaison des caractéristiques, en terme de probabilités de présence de  $n$  photons dans une impulsion : d'un laser atténué typique utilisé dans les expériences de cryptographie quantique, de notre source à un photon réalisée en plaçant une boîte quantique unique dans un micropilier et d'une source à photons uniques réalisable à l'état de l'art technologique. Notre source à un photon contient moins d'impulsions vides et moins d'impulsions contenant plus d'un photon qu'un laser atténué.

partie 1.3, nous avons vu que l'emploi d'une source à photons uniques permet d'augmenter la portée maximale de transmission. Avec la source de photons uniques ainsi réalisée, cette portée maximale est augmentée de 50% : elle passe de 12 km (avec une diode laser atténuée) à 17 km (de 25 km à 36 km pour une source qui émettrait à  $1.3 \mu\text{m}$ ). A portée égale (12 km), notre source à photons permettrait d'obtenir un débit de  $1.9 \times 10^{-4}$  bits/impulsion au lieu de  $3 \times 10^{-5}$  bits/impulsion pour un laser atténué, soit un débit 6.3 fois plus élevé (augmentation du débit limitée par le facteur  $1/g^{(2)}(0)$ , voir partie 1.3). A  $1.3 \mu\text{m}$  et pour une portée de 25 km, le débit serait également de  $1.9 \times 10^{-4}$  bits/impulsion.

Enfin, il est intéressant d'estimer les performances atteignables par nos sources à un photon sans difficulté technologique majeure. Nous avons vu que pour des gravures à l'état de l'art, un taux de collection utile des photons  $\beta_u$  aussi haut que 0.7 peut être atteint. A terme, le contrôle de la position des boîtes quantiques sera très souhaitable pour mieux maîtriser  $F_p$  et donc  $\beta_u$ . De plus, les expériences d'auto-corrélation sur les boîtes quantiques uniques dans les *mesas* donnent des valeurs très proches de 0 pour  $g^{(2)}(0)$ . Ceci laisse espérer des valeurs également nulles pour  $g^{(2)}(0)$  pour les boîtes quantiques dans les micropiliers si leur densité est diminuée. Alors les caractéristiques de la source à photons uniques seraient les suivantes :  $P(0) = 0.3$ ,  $P(1) = 0.7$  et  $P(n > 1) \sim 0$ . La portée des communications passe alors à 36 km au lieu de 12 km (de 25 km à 77 km pour une source qui émettrait à  $1.3 \mu\text{m}$ ). A portée égale (12 km à  $1 \mu\text{m}$  et 25 km à  $1.3 \mu\text{m}$ ), le débit est de  $2.7 \times 10^{-3}$  bits/impulsion, soit 90 fois plus élevé que pour un laser atténué.

Les caractéristiques de ces différentes sources sont résumées dans le tableau 5.1.

## 5.4 Comparaison quantitative des différents émetteurs de photons uniques

Dans le chapitre 1, nous avons décrit qualitativement les différents émetteurs de photons uniques existant à l'heure actuelle. Nous avons très brièvement décrit le principe de l'émission de photons uniques pour chaque émetteur et discuté qualitativement les avantages et inconvénients de chaque source. Dans cette section, nous allons décrire les performances de ces émetteurs en terme plus quantitatifs, à savoir leur fonction d'auto-corrélation du second ordre et leur efficacité de collection utile  $\beta_u$ . Cette dernière donnée n'est souvent que grossièrement estimée, seul le taux de détection et de collection général est disponible dans les publications.

### – Molécules

B. Lounis et W. E. Moerner [43] démontrent pour leur molécule à température ambiante un  $g^2(0)$  à 0.27 avec un taux de collection des photons de l'ordre de 6%. Notons que le taux de répétition des impulsions n'est que de 6.25 MHz.

### – Centres N-V du diamant

A. Beveratos *et al.* [46] obtiennent un  $g^2(0)$  de 0.17 pour un centre N-V dans un nanocristal de diamant. Les taux de collection ne sont au mieux que de quelques pour-cent.

### – Nanocristaux de CdSe/ZnS

P. Michler *et al.* [65] annoncent un  $g^2(0)$  de 0.47 pour des nanocristaux de CdSe/ZnS émettant à température ambiante. Le taux de collection utile est là encore estimé, au mieux, à quelques pour-cent.

L'ensemble de ces performances et des caractéristiques de chaque émetteur est résumé dans le tableau 5.2. Des travaux d'autres équipes montrent également un  $g^2(0)$  très proche de 0 pour des boîtes quantiques InAs/GaAs. P. Michler *et al.* [30, 67] démontrent un  $g^2(0)$  rigoureusement nul pour des boîtes quantiques (hors résonance) dans des micro-disques. Cependant, rappelons que ce système n'est pas adapté à la collection des photons, ces derniers sont émis sur  $360^\circ$ . C. Santori *et al.* [31] démontrent un  $g^2(0)$  de 0.12 mais pour des boîtes quantiques dans des *mesas*.

Ainsi, les boîtes quantiques uniques en micropiliers apparaissent comme les meilleurs candidats. Ce système conjugue à la fois une faible probabilité d'émettre plus d'un photon par impulsion et une efficacité de collection utile des photons élevée. C'est aussi la seule

	$g^2(0)$	$\beta_u$	$t_{vie}$	$T_{fonc}$	Emission monomode	Remarques
Molécule	0.27	0.06	3.8 ns	300 K	non	stable
Centre N-V	0.17	$\sim 0.01$	25 ns	300 K	non	stable
Nanocristal CdSe/ZnS	0.47	$\sim 0.01$	32 ns	300 K	non	scintillement
Boîte quantique en micropilier	0.16	0.39	1.3 ns	8 K	oui	stable

TAB. 5.2 – Comparaison des caractéristiques des différentes sources de photons uniques existant à l'heure actuelle.  $t_{vie}$  désigne le temps de vie du niveau radiatif et  $T_{fonc}$  la température de fonctionnement du dispositif. Les boîtes quantiques uniques en micropilier présentent les meilleures caractéristiques notamment en ce qui concerne le taux de collection utile des photons. C'est aussi la seule source émettant de façon monomode. Cependant son fonctionnement ne se fait à l'heure actuelle qu'à basse température.

source capable d'émettre les photons de façon monomode. Cependant sa température de fonctionnement est actuellement de 8 K. Nous verrons dans la section suivante qu'une température de fonctionnement au-delà de 77 K est envisageable.

## 5.5 Evolution de $g^{(2)}(0)$ avec la température

Notre source à un photon présente une distribution statistique des photons par impulsion meilleure<sup>2</sup> que les autres émetteurs de photons uniques et qu'un laser atténué typique, actuellement utilisé dans les expériences de cryptographie quantique. Cependant notre source présente l'inconvénient de fonctionner, pour l'instant, uniquement à basse température. Dans toutes les expériences présentées, l'échantillon est refroidi à 8 K. Nous avons ainsi conduit des expériences d'auto-corrélation sur une boîte quantique unique dans un micropilier en fonction de la température pour estimer la dégradation de  $g^{(2)}(0)$ .

La figure 5.5 présente les spectres du micropilier étudié (diamètre de  $0.9 \mu\text{m}$ ) en fonction de la température. Ce micropilier est celui contenant  $BQ_{cav}$ . Le spectre à 10 K présenté ici est différent de celui présenté précédemment, au chapitre 4. Ces expériences, réalisées plusieurs mois après les précédentes, révèlent une altération de l'émission lumineuse de certaines boîtes quantiques en micropiliers. Ce phénomène reste imparfaitement compris à ce jour, mais pourrait être lié à l'oxydation spontanée des couches d'AlAs. Il faut noter qu'une trop forte illumination des micropiliers modifie considérablement l'émission des boîtes quantiques placées à l'intérieur. Même après recyclage thermique, les boîtes

<sup>2</sup>C'est à dire plus proche de la distribution statistique d'une source à un photon idéale :  $P(0) = 0$ ,  $P(1) = 1$  et  $P(n > 1) = 0$ .

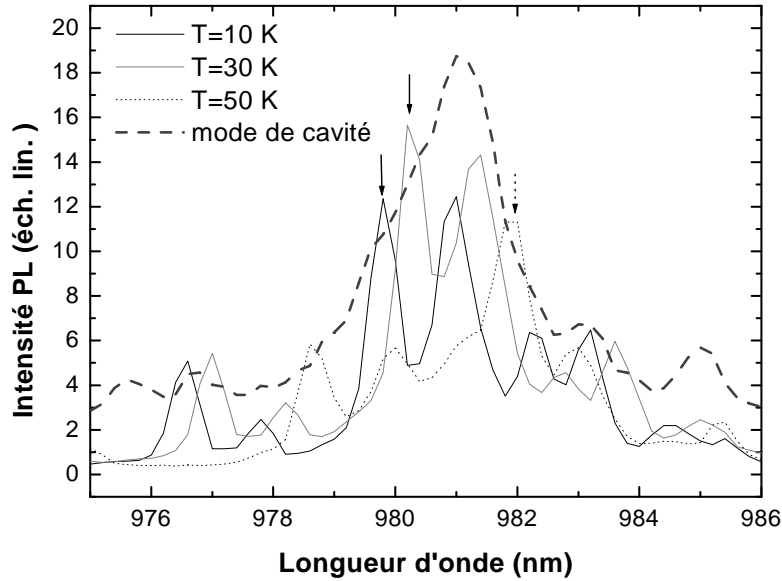


FIG. 5.5 – Spectres du micropilier étudié en fonction de la température. En trait épais tireté est aussi représenté le mode de la cavité. Les spectres des boîtes quantiques se déplacent vers les grandes longueurs d'onde avec la température. La boîte quantique étudiée est repérée par une flèche pour chaque température.

quantiques ne retrouvent pas toujours leur émission originelle.

Le mode de la cavité (représenté en pointillé et trait épais) ne se déplace pratiquement pas avec la température. Par contre, la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques se déplace vers les grandes longueurs d'onde avec la température. Ce déplacement en longueur d'onde varie quadratiquement avec la température. Ainsi, nous avons choisi la boîte quantique (repérée par une flèche) située dans le flanc gauche du mode de la cavité à  $T = 10$  K de manière à pouvoir suivre l'émission de cette boîte quantique aux températures les plus élevées possibles. A  $T = 50$  K, l'émission de la boîte quantique s'est déplacée et s'effectue désormais dans le flanc droit du mode. Au-delà de  $T = 50$  K, l'émission de la boîte quantique sort du mode de cavité et disparaît dans le signal de fond, puisque son émission n'est plus redirigée dans le mode par l'effet Purcell.

Sous ces conditions d'excitation (impulsionnelle), nous avons alors conduit des expériences d'auto-corrélation sur cette boîte quantique. Les histogrammes de corrélation sont présentés figure 5.6 pour trois températures différentes. Les valeurs de  $g^{(2)}(0)$  obtenues pour 10 K, 30 K et 50 K sont respectivement de 0.41, 0.54 et 0.71. Comme attendu,  $g^{(2)}(0)$  se dégrade avec la température. Toutefois, même à  $T = 50$  K, on observe toujours un effet de dégroupement de photons, ce qui prouve que la distribution statistique des photons



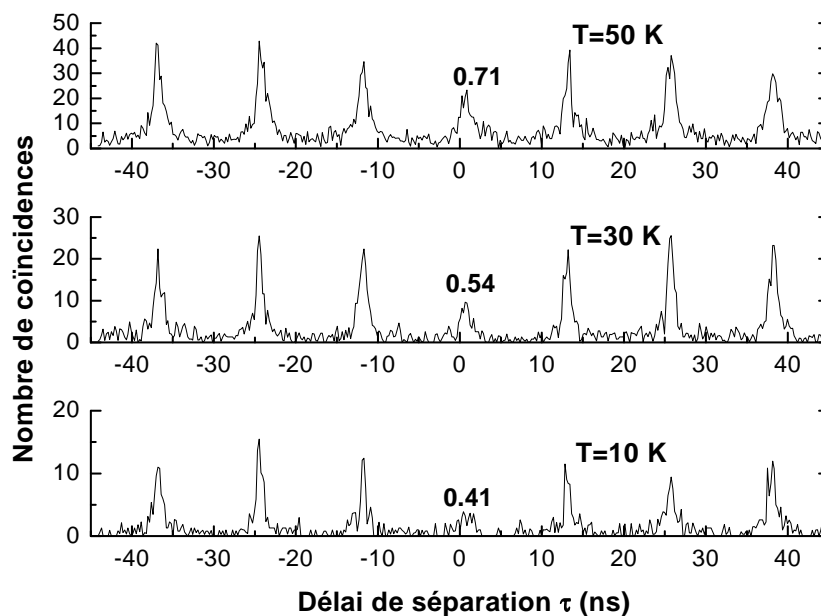


FIG. 5.6 – Histogrammes des coïncidences enregistrés pour la raie X de la boîte quantique étudiée pour des températures de 10 K, 30 K et 50 K. Les conditions d'excitation correspondent aux spectres présentés figure 5.5. Les nombres au-dessus des pics centraux indiquent les valeurs de  $g^{(2)}(0)$ .  $g^{(2)}(0)$  a tendance à se dégrader avec l'augmentation de la température.

reste sub-poissonienne.

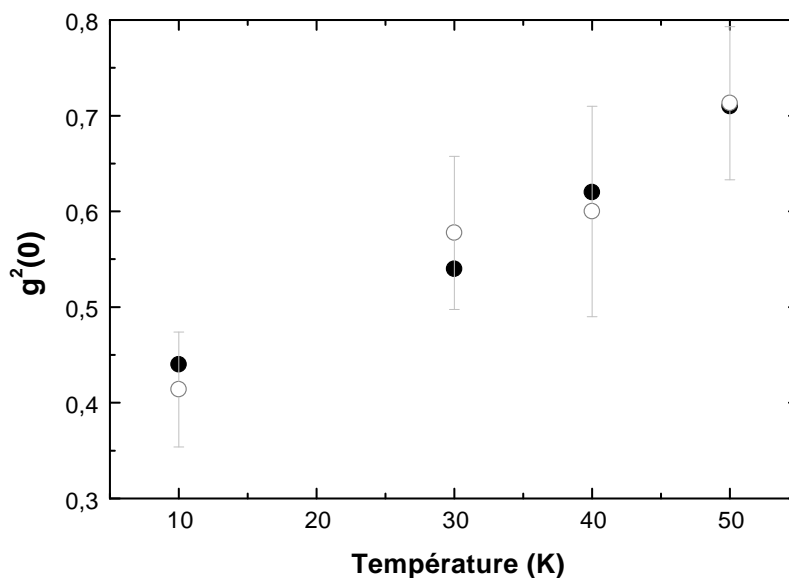


FIG. 5.7 – Valeurs mesurées (●) et attendues (○), à partir du rapport signal sur bruit observé  $\rho$ , pour  $g^{(2)}(0)$  en fonction de la température. Le niveau de bruit observé rend ainsi bien compte de la dégradation de  $g^{(2)}(0)$ .

La dégradation de  $g^{(2)}(0)$  observée provient principalement de la montée du signal de fond avec la température. Comme nous l'avons déjà vu, ce signal est principalement associé à l'émission secondaire de boîtes quantiques situées à d'autres longueurs d'onde et à la couche de mouillage. Cette émission est due à l'interaction avec les phonons, qui est bien une fonction croissante de la température. Comme dans la partie 3.1.4.1, nous avons calculé la valeur attendue de  $g^{(2)}(0)$  à partir du rapport signal sur bruit  $\rho$ . La figure 5.7 présente les valeurs mesurées et attendues de  $g^{(2)}(0)$  pour les différentes températures. On note que le niveau de signal de fond observé rend ainsi bien compte de la dégradation de  $g^{(2)}(0)$  avec la température.

Au-delà de 70 K, les raies X diminuent en intensité. Cet effet est dû à la thermoémission des porteurs. Les porteurs piégés peuvent s'échapper à cause du faible gap d'énergie entre les niveaux discrets de la boîte quantique et le continuum d'états de la barrière de GaAs devant  $k_B T$ . L'efficacité quantique des boîtes n'est alors plus égale à 1. Cet effet est encore plus marqué pour les boîtes quantiques peu profondes.

Notons que  $g^{(2)}(0)$  est déjà élevé à  $T = 10$  K pour cette boîte quantique particulière, principalement à cause de la densité trop élevée de boîtes quantiques dans ce micropilier. On peut ainsi espérer un bien meilleur comportement en température pour une boîte quantique réellement unique et atteindre 77 K avec un  $g^{(2)}(0)$  très faible.

## 5.6 Conclusion

Les pertes extrinsèques de la cavité nous ont obligé à redéfinir les paramètres optimaux des micropiliers pour maximiser la collection utile des photons. Le maximum de cette efficacité de collection est obtenu en faisant un compromis entre un facteur de Purcell élevé et les pertes par rugosités de flancs. Nous avons démontré expérimentalement que la source à un photon, réalisée en plaçant une boîte quantique unique dans un micropilier, délivre un et un seul photon pour près de 40% des impulsions avec seulement 1% des impulsions contenant plus d'un photon. Ces résultats font déjà de notre système la source de photons uniques la plus efficace comparé aux autres émetteurs actuels. Nous pensons qu'une réduction de la densité des boîtes quantiques alliée à une optimisation des paramètres des micropiliers doit permettre d'atteindre un taux de collection utile des photons d'au moins 70%.

Enfin, nous avons étudié la principale limite de notre source à photons uniques, à

savoir la température. Les expériences réalisées nous laissent espérer un fonctionnement à 77 K proche d'une source à un photon idéale. Là encore, une réduction de la densité de boîtes quantiques permettra certainement une meilleure tenue en température. Une solution consiste également à employer des boîtes quantiques CdSe/ZnSe (système II-VI). Il est envisageable pour ce type de boîte quantique de sélectionner spectralement la raie X jusqu'à 300 K. En effet, comparativement au système InAs/GaAs, les raies X et XX sont plus éloignées spectralement [83]. Ainsi les raies restent, malgré leur élargissement, bien séparées en énergie lorsque la température augmente. Ces boîtes quantiques qui émettent dans le visible ne sont pas adaptées pour la transmission sécurisée sur fibre optique mais pourraient s'avérer utiles pour les communications sécurisées en espace libre.

# Chapitre 6

## Conclusion et Perspectives

### 6.1 Bilan

Dans ce travail de thèse nous avons réalisé une source à photons uniques basée sur l'intégration d'une boîte quantique dans un micropilier. Nous avons d'abord étudié les propriétés de microphotoluminescence d'une boîte quantique unique et avons identifié les principales raies d'émission, à la fois par la dépendance en puissance de leur émission et leur spectroscopie résolue en temps.

La génération d'états quantiques de la lumière a alors été mise en évidence sur une boîte quantique unique. Les expériences d'auto-corrélation sur la raie associée à l'état exciton montrent qu'une boîte quantique constitue un émetteur idéal de photons uniques, avec une probabilité quasi-nulle d'émettre plus d'un photon par impulsion. Cette expérience a aussi été réalisée sous excitation continue et présente des résultats en bon accord avec un modèle simple à deux niveaux. Les expériences d'auto-corrélation sur la raie associée à l'état biexciton ont également révélé la nature quantique de cette émission.

Les expériences de corrélation croisée entre la raie X et la raie XX ont permis d'affirmer définitivement que le photon X est émis après le photon XX. Une boîte quantique permet donc ainsi de générer des paires de photons corrélés dans le temps. Cette expérience de corrélation croisée s'est avérée un outil puissant pour l'identification des raies d'émission d'une boîte quantique unique.

Nous avons alors démontré des effets d'électrodynamique quantique en cavité à l'état solide sur un émetteur unique en plaçant une boîte quantique en résonance avec le mode fondamental d'un micropilier. Des expériences de microphotoluminescence résolue en

temps ont mis en évidence un raccourcissement du temps de vie pour une boîte quantique en résonance, donnant un facteur d'exaltation du taux d'émission spontanée au moins égal à 3. Les expériences de dépendance de l'émission en fonction de la puissance d'excitation ont révélé des facteurs d'exaltation aussi élevés que 10, en comparant les puissances de saturation d'émetteurs hors résonance et en résonance. Ces résultats montrent (de façon indirecte) que la majorité des photons sont collectés grâce à l'effet Purcell dans un seul et même mode spatial. Enfin, l'utilisation de micropiliers à section elliptique, en levant la dégénérescence en polarisation des modes, permet de contrôler la polarisation des photons émis.

Nous avons alors vu que des pertes extrinsèques à la cavité, notamment dues aux rugosités de flancs, causaient une voie d'échappement supplémentaire pour les photons. La dégradation du facteur de qualité avec la taille des micropiliers a notamment été observée par des expériences de caractérisation optique des cavités. Un taux de collection utile des photons a alors été défini, prenant en compte toutes les pertes de la cavité. Alors qu'auparavant les micropiliers issus de cavités planaires avec des facteurs de qualité très élevés étaient recherchés, la maximisation de ce nouveau facteur de mérite entraîne le développement de micropiliers partant de facteurs de qualité plus faibles, mais moins sensibles aux effets de rugosités de flancs aux petites tailles.

Notre source à un photon, obtenue en plaçant une boîte quantique unique en résonance avec le mode de cavité, présente les caractéristiques suivantes. La probabilité de collecter un photon par impulsion est proche de 40% et la probabilité d'émettre plus d'un photon par impulsion est aussi faible que 1%. La comparaison avec d'autres émetteurs de photons uniques montrent que les boîtes quantiques en micropiliers présentent le net avantage de combiner à la fois l'émission de photons uniques monomodes avec un taux de répétition élevé et une excellente efficacité de collection. Enfin, des expériences d'auto-corrélation en fonction de la température montrent une dégradation de l'émission de photons uniques avec la température. Ces résultats laissent espérer un fonctionnement au-delà de 77 K en utilisant des boîtes quantiques plus profondes mais aussi en employant un micropilier contenant réellement une seule boîte quantique.

## 6.2 Amélioration de la source à photons uniques

### 6.2.1 Abaissement de $g^{(2)}(0)$

Nous avons vu dans le chapitre 5 que des micropiliers à l'état de l'art pourraient permettre d'atteindre des taux de collection utile des photons de l'ordre de 70%. A moins de percées technologiques en ce qui concerne la gravure des microcavités, il est difficile de croire que cette valeur de 70% puisse être aisément dépassée pour les micropiliers. Par contre, la source à un photon réalisée présente un  $g^{(2)}(0)$  non nul. Nous pensons que  $g^{(2)}(0)$  pourrait approcher 0, comme pour les boîtes quantiques uniques dans les *mesas*, à condition d'employer un plan de boîtes quantiques beaucoup moins dense. Une solution consiste à faire croître un ensemble d'ilôts dits zone-frontière (voir chapitre 2) et à repérer les boîtes quantiques uniques grâce à un quadrillage. Les micropiliers seraient alors fabriqués aux endroits où une boîte quantique a été repérée. Cette technique a l'avantage, d'une part de fabriquer des micropiliers contenant réellement une seule boîte quantique, et d'autre part d'être sûr que l'émetteur se situe bien spatialement au centre de la microcavité, de manière à bénéficier au maximum des effets d'électrodynamique quantique en cavité.

### 6.2.2 Allègement du dispositif

Notre source de photons uniques présente actuellement l'inconvénient de ne pouvoir être utilisable qu'avec un monochromateur. Celui-ci sélectionne spectralement la raie X de la boîte quantique, mais diminue aussi considérablement le taux de collection et de détection global des photons. Une première solution est de remplacer le monochromateur par un filtre interférentiel, ce qui accroîtrait déjà considérablement le taux de détection global des photons. Une solution encore plus élégante consiste à employer doublement la microcavité pour remplir cette fonction. Nous avons vu que le micropilier sert à préparer les photons dans un même état donné et à collecter efficacement les photons. Le micropilier peut aussi être utilisé pour sélectionner spectralement la raie X, associée à l'état exciton. Il suffit que le mode de cavité soit suffisamment fin pour n'inclure spectralement que la raie X. Les photons correspondant à des états autres que l'exciton sont alors émis dans les modes de fuite de la cavité et ne sont donc pas collectés (on collecte uniquement les photons émis par le haut dans l'axe du micropilier). On améliorerait ainsi considérablement le taux de collection et de détection global tout en allégeant le dispositif de production des photons uniques.

### 6.2.3 Augmentation de la température d'utilisation

Une des autres voies d'amélioration consiste bien entendu à augmenter la température d'utilisation. Nous avons vu dans le chapitre 5 que  $g^{(2)}(0)$  se dégradait avec l'augmentation de la température, principalement à cause de la montée du signal résiduel provenant de la couche de mouillage et de la présence d'autres boîtes quantiques. L'emploi de boîtes quantiques plus profondes (situées à plus basse énergie) et plus diluées doit permettre d'atténuer très fortement l'effet de la couche de mouillage et des autres boîtes quantiques. Une utilisation au-delà de 77 K est ainsi envisageable.

Pour des températures plus élevées, deux obstacles entravent le fonctionnement de notre source à photons uniques. Le premier est que la séparation en énergie des raies X et XX devient alors plus faible que la largeur spectrale des raies, à cause de leur élargissement avec la température. La sélection spectrale de la raie X n'est alors plus possible et rien ne garantit l'émission de photons uniques. Une solution consiste à employer des boîtes quantiques auto-assemblées CdSe/ZnSe (système II-VI) pour lesquelles la séparation en énergie des raies X et XX est beaucoup plus importante [83].

Le deuxième obstacle intervient lorsque la largeur de la raie X excède la largeur du mode de cavité. En effet, lorsque la largeur de l'émetteur excède la largeur du mode de cavité, nous avons vu au chapitre 3 que le facteur de Purcell est diminué d'un facteur  $\Delta\lambda_{\text{emetteur}}/\Delta\lambda_{\text{cavite}}$ . Si  $F_p$  chute en dessous de  $\sim 3 - 4$ , le micropilier ne remplit plus alors son rôle de redirection de l'émission des photons dans une même direction. Il faut alors se tourner vers d'autres microcavités comme les cristaux photoniques [118, 119, 157, 120] pour travailler à haute température. En effet, pour un même facteur de Purcell, on peut se contenter d'un mode de cavité plus large pour les cristaux photoniques que pour les micropiliers car leur volume effectif est plus faible [158, 159]. Les cristaux photoniques permettent alors de bénéficier entièrement de l'effet Purcell tant que la largeur du mode de cavité reste supérieure à celle de l'émetteur.

## 6.3 Injection électrique des porteurs

Toujours dans cet esprit d'amélioration du dispositif, une injection électrique des porteurs est souhaitable. En plus de la réduction de l'encombrement, elle serait une étape supplémentaire vers la production à une échelle industrielle de la source à photons uniques.

Des résultats récents sur l'émission de photons uniques par une boîte quantique

unique pompée électriquement sont encourageants pour de tels développements [66]. Des boîtes quantiques InAs/GaAs sont placées à l'intérieur d'une jonction p-i-n. Des impulsions électriques de 400 ps de largeur permettent de remplir les boîtes quantiques de porteurs. Les expériences d'auto-corrélation effectuées sur la raie X d'une boîte quantique démontrent bien la propriété de dégroupement de photons de l'émission. La fonction d'auto-corrélation du second ordre  $g^{(2)}(0)$  est de l'ordre de 0.1. L'émission parasite des photons additionnels est attribuée à une électroluminescence de fond.

Pour transposer cette technique à notre dispositif, il faut être capable de réaliser des micro-contacts électriques sur les micropiliers pour injecter les porteurs. Toutefois, il y a un risque de dégradation des qualités optiques du micropilier à cause de ces contacts. L'effet de l'injection électrique sur l'émission, mais aussi sur l'efficacité de collection des photons devra donc être étudiée.

Une autre solution, plus simple, consiste à intégrer un micropilier à boîtes quantiques sur un laser par émission par la surface (VCSEL) [160, 161]. Les micropiliers assurent alors la conversion des impulsions poissoniennes délivrées par le VCSEL en impulsions à un photon.

## 6.4 Emission de photons intriqués

Au cours de ce travail de thèse nous avons démontré l'émission de paires de photons corrélés dans le temps. A la fin du chapitre 3, nous avons décrit une méthode pour émettre des paires de photons intriqués en polarisation. Cette méthode est basée sur le fait qu'à partir de l'état biexciton, il existe deux chemins, que l'on ne peut distinguer si aucune mesure de polarisation n'est réalisée, pour émettre un photon XX puis un photon X. Ceci satisfait la principale condition nécessaire pour l'intrication en polarisation des photons émis.

Jusqu'à ce jour des corrélations en polarisation [116] ont été mises en évidence mais aucun effet d'intrication. La raison principale est très certainement due à l'absence de cohérence de phase entre les deux photons émis. Les photons ne sont pas alors parfaitement indiscernables du point de vue de leur fréquence. Cette condition d'indiscernabilité est également nécessaire à l'intrication. Pour remplir cette condition il faut que le temps de déphasage des photons  $T_2$  soit limité par le temps de vie radiatif  $T_1$ . Alors, la condition suffisante pour observer l'intrication serait que la largeur des transitions excitoniques



limitée par  $T_1$  soit plus grande que l'écart de longueur d'onde entre les deux excitons (correspondant aux deux chemins de désexcitation). La réalisation de tels états fait l'objet de la section suivante.

## 6.5 Photons indiscernables

Les photons uniques produits par notre source ne proviennent pas *a priori* d'une émission cohérente, comme le suggèrent les temps de déphasage  $T_2$  très faibles mesurés pour ces boîtes quantiques [87, 86, 114]. De plus, les premières expériences sur l'intrication des photons issus des raies X et XX se sont révélées pour l'instant négatives [116]. Cette condition de cohérence de phase n'a rien d'indispensable pour l'application à la distribution de clefs quantiques. Par contre elle l'est dans le cas d'une application à l'ordinateur quantique [53, 162].

La réalisation de portes logiques quantiques conditionnelles à partir de photons uniques est basée sur des effets d'interférence à plusieurs photons de type Hong, Ou, Mandel [56, 54]. La réalisation expérimentale de telles propositions avec un maximum d'efficacité nécessite des photons uniques monomodes spectralement, c'est-à-dire dont les largeurs spectrales et temporelles sont limitées par la relation d'incertitude temps-énergie. Ce type de photons uniques produits dans un seul mode spatial, temporel, spectral et de polarisation n'a pour l'instant jamais été réalisé expérimentalement. Il est l'état de lumière le plus "pur" que l'on puisse imaginer.

Il a été également suggéré récemment que de tels photons monomodes devraient permettre de préparer des états de Fock à N photons dans le but de réaliser de la lithographie avec une résolution spatiale accrue d'un facteur N [163].

La condition nécessaire à la réalisation d'une telle source est de disposer d'un dipôle unique dont la transition n'est pas élargie par des mécanismes déphasants autres que radiatifs, c'est-à-dire dont le temps de déphasage  $T_2$  est imposé par la durée de vie  $T_1$  (*i.e.*  $T_2 = 2T_1$ ). Afin d'approcher ce régime, on peut, soit rallonger  $T_2$ , soit diminuer  $T_1$  autant que possible.

Dans le cas des boîtes quantiques,  $T_2$  est limité par l'interaction avec les phonons et celles avec l'environnement électrostatique de l'émetteur [87].  $T_2$  peut ainsi être augmenté en contrôlant mieux l'environnement électrostatique de l'émetteur ou en travaillant à très basse température. Des résultats expérimentaux récents [86], obtenus à 7 K, montrent que

des boîtes quantiques InAs devraient présenter une largeur de raie de  $0.68 \mu\text{eV}$  limitée par la durée de vie ( $T_1 = 1 \text{ ns}$ ) pour des températures proches de 0 K.

Une méthode consisterait à changer de boîtes quantiques et utiliser des émetteurs plus rapides. Ainsi les boîtes quantiques de la famille II-VI, pour lesquelles des mesures de  $T_2 \sim 2T_1$  à des températures de 5 K ont été réalisées [164], offrent des perspectives encourageantes pour ce type d'application. La faible durée de vie des boîtes quantiques CdTe ou CdSe (200 ps contre 1.3 ns pour InAs) leur permet d'être insensibles aux mécanismes déphasants pour des températures plus élevées, pouvant dépasser les 5 K. Une alternative est de développer les boîtes quantiques à fluctuation d'interface, qui disposent d'une force d'oscillateur très grande et donc d'un temps de vie très court, inférieur à tous les autres temps de décohérence [85].  $T_2$  est alors limité par  $T_1$ . La propriété ( $T_2 = 2T_1$ ) a ainsi récemment été vérifiée pour une boîte quantique isolée, formée à l'interface d'un puits quantique GaAs/AlGaAs, dont la durée de vie très courte ( $T_1 = 16 \text{ ps}$ ) est plus rapide que tous les mécanismes déphasants [165]. Pour le système InAs/GaAs, une diminution de  $T_1$  est bien entendu possible par l'intégration de l'émetteur dans une microcavité tridimensionnelle. Le couplage de la boîte quantique au champ permet de bénéficier d'un fort effet Purcell et de ramener le temps de vie de l'émetteur en dessous de tous les autres temps de déphasage (alors  $T_2 \sim 2T_1$ ).

Cet effet d'interférence à deux photons peut être mis en évidence à l'aide d'un interféromètre multiphotonique de type Hong, Ou, Mandel [54, 166]. Il apparaît lorsque les deux voies d'entrée d'une lame séparatrice 50/50 sont chacune alimentée par un état à un seul photon : les deux photons ressortent alors toujours ensemble sur une des deux voies de sortie, et jamais chacun sur une voie de sortie différente. Dans l'expérience originale, les deux photons faisaient partie d'une même paire de photons produite par processus non-linéaire du deuxième ordre [54].

Dans notre cas, les photons uniques monomodes seraient émis successivement par le même émetteur et seraient combinés sur une lame séparatrice. Une ligne à retard insérée dans le dispositif permettrait de décaler temporellement un photon par rapport à l'autre. Le nombre de coïncidences entre les événements de photodétections sur les deux voies de sortie de la lame séparatrice devrait s'annuler lorsque les deux photons arrivent en même temps sur la lame séparatrice. Ce montage expérimental constituerait la brique de base pour la réalisation de portes quantiques C-NOT et permettrait d'évaluer l'efficacité de fonctionnement d'une telle porte ainsi que les potentialités de cascabilité et

de réalisation de montages plus complexes menant vers l'ordinateur quantique. Le LPN envisage d'étudier cette problématique en collaboration avec le LPMC de l'ENS et le CEA de Grenoble (NES). Il devrait permettre d'identifier le fonctionnement d'une telle porte.

## Annexe A

# Expérience de microphotoluminescence

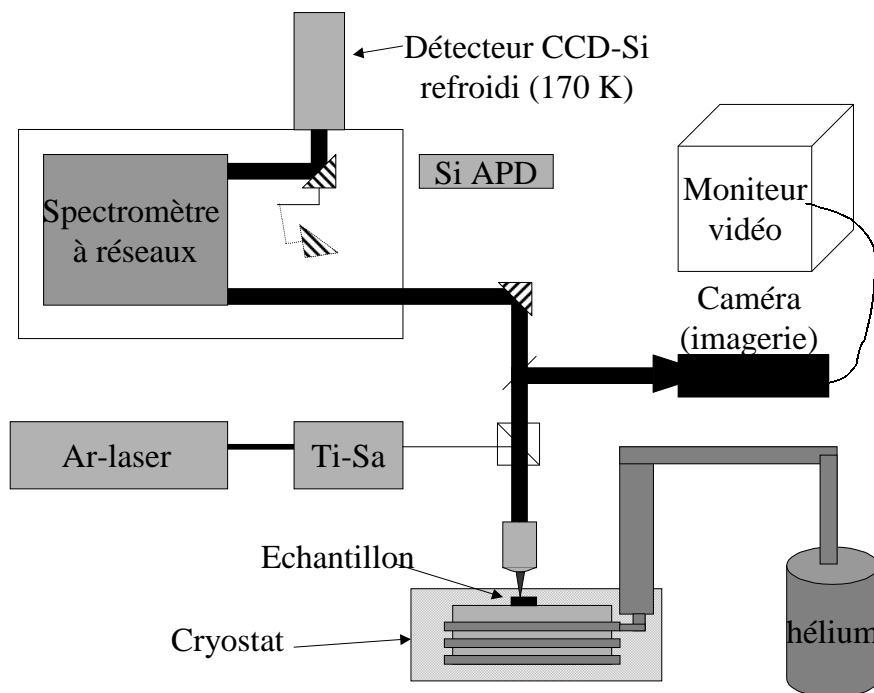


FIG. A.1 – Schéma du montage expérimental de microphotoluminescence.

Cette annexe décrit l'expérience de microphotoluminescence que nous avons utilisé pour les caractérisations optiques de microcavités et de boîtes quantiques uniques lors de ce travail de thèse. Le montage expérimental est schématisé figure A.1.

Le laser exciteur est un laser titane-saphir pompé par un laser à argon. Le laser titane-saphir est accordable en longueur d'onde, typiquement de 720 nm à 860 nm avec

notre jeu de miroirs. La puissance maximum émise est de l'ordre de 2.5 W. Le faisceau issu du laser titane-saphir est légèrement divergent et nécessite d'être recollimaté par un doublet de lentilles. Un cube semi-transparent permet d'injecter le faisceau laser dans un objectif de microscope. Remarquons que la partie du faisceau transmise par le cube peut servir à faire des mesures de puissance en continu. L'objectif de microscope sert à focaliser le faisceau laser sur l'échantillon.

L'échantillon est en général placé dans un cryostat à circulation d'hélium. Une résistance chauffante permet de faire varier continûment la température entre 8 K et la température ambiante. Ce cryostat est placé sur une platine micro-contrôle permettant de déplacer l'échantillon par rapport à l'axe optique avec une précision meilleure que  $0.1 \mu\text{m}$ . La distance de travail du microscope est adaptée aux caractéristiques du cryostat. Celui-ci est spécialement conçu pour que l'échantillon puisse être placé près de la fenêtre, sans que les pertes par radiation n'induisent d'échauffement excessif. Il permet de travailler avec un objectif de microscope de distance de travail de 11 mm. Nous utilisons un objectif Olympus  $\times 20$ , de grande ouverture numérique  $NA = 0.4$ . Nous pouvons alors focaliser le laser sur un spot de diamètre minimum de  $2 \mu\text{m}$ . L'échantillon peut être imagé sur une caméra CCD en intercalant une lame sur le trajet optique. Cette lame est retirée lors de l'acquisition du signal de photoluminescence. Cette visualisation permet de se repérer sur l'échantillon et d'exciter un micro-objet choisi.

Le signal de photoluminescence est collecté par le même objectif de microscope, puis est focalisé sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Nous utilisons un spectromètre à deux réseaux (600 traits/mm), de focale 1 m. Nous pouvons alors avoir une résolution maximale de  $30 \mu\text{eV}$ . En sortie de spectromètre, le signal dispersé peut être analysé par deux détecteurs, le choix se faisant en basculant un miroir mobile. Une photodiode à avalanche en silicium (fabricant : Hamamatsu) permet une détection monocanale (i.e. à une longueur d'onde donnée) du signal. Cette photodiode est couplée à un module de comptage de photons. Le bruit interne de la photodiode est remarquablement bas ( $< 10$  coups/s). La contrepartie est sa faible taille ( $50 \times 50 \mu\text{m}$ ) qui rend les réglages très sensibles. Le signal maximum détectable est de  $5.10^5$  coups/s. Ce détecteur peut être utilisé pour réaliser un spectre de photoluminescence. On fait alors défiler le spectromètre sur la plage spectrale choisie. Nous avons également utilisé ce détecteur pour réaliser des mesures du signal de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation à une longueur d'onde de détection donnée. Pour cela, on fixe le spectromètre à la longueur d'onde choisie, puis on

fait varier la puissance incidente grâce à une densité neutre variable circulaire, qui est mise en rotation par un moteur continu. On détecte alors le signal de photoluminescence et la puissance incidente simultanément.

L'autre détecteur en sortie de spectromètre est une barrette CCD silicium refroidie à 170 K grâce à un réservoir d'azote liquide. On peut ainsi accumuler un spectre sur une plage de 20 nm sans faire défiler le spectromètre. Sa grande sensibilité permet d'être en général plus performant que le détecteur monocanal. Pour les deux détecteurs, la résolution spectrale est imposée par le spectromètre et est de l'ordre de  $30 \mu\text{eV}$ .



## Annexe B

# Expérience de corrélation de photons

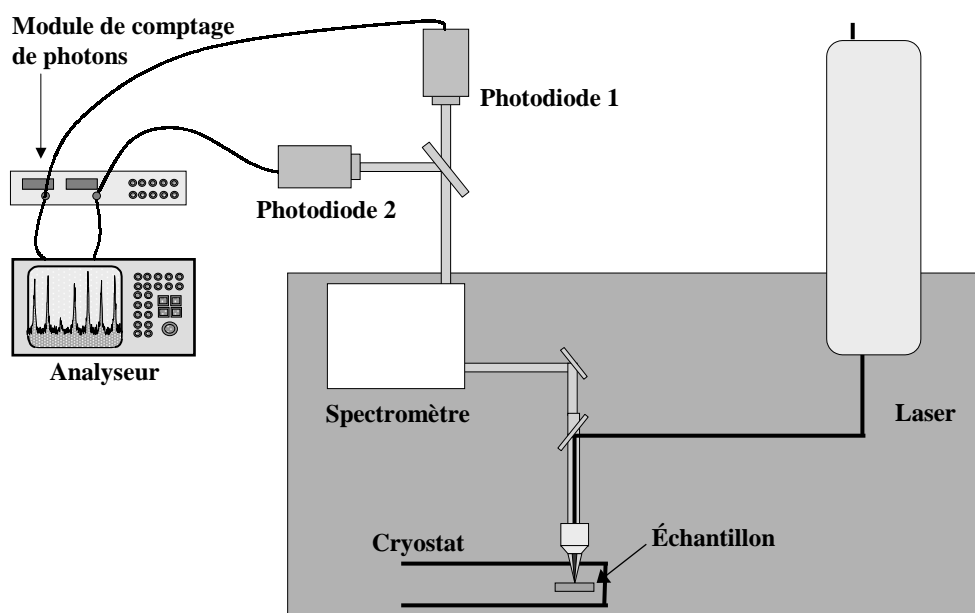


FIG. B.1 – Schéma du montage expérimental de l'expérience de corrélation de photons. Elle est associée à un premier montage de microphotoluminescence, correspondant à la partie grisée sur le schéma.

Cette annexe décrit l'expérience de corrélation de photons (voir schéma B.1), aussi appelée Hanbury Brown et Twiss, que nous avons utilisé pour les expériences de dégroupement de photons et de cascades radiatives ainsi que pour les mesures de temps de vie des boîtes quantiques. Elle est associée à un premier montage de microphotoluminescence (partie grisée du schéma B.1), que nous commençons par décrire. Nous utilisons



un laser titane-saphir accordable, typiquement de 780 nm à 920 nm avec notre jeu de miroirs, pompé par un laser à argon. Le laser titane-saphir est destiné à être utilisé en régime pulsé mais peut aussi fonctionner en régime continu à condition de baisser suffisamment la puissance de pompe. La puissance maximum émise est de l'ordre de 1.5 W. Un ensemble de roues de densités optiques différentes est placé à la sortie du laser de manière à pouvoir faire varier la puissance incidente. Le faisceau est ensuite élargi par un doublet de lentilles (focales 10 mm et 80 mm). Une lame séparatrice 90-10 (10% du faisceau laser est transmis) permet d'injecter le faisceau laser dans un objectif de microscope. L'objectif de microscope (type Cassegrain, ouverture numérique de 0.5 et frontale de 7 mm) sert à focaliser le faisceau laser sur l'échantillon. L'échantillon est placé dans un cryostat à circulation d'hélium (Oxford). Une résistance chauffante permet de faire varier continûment la température entre 8 K et la température ambiante. Ce cryostat est placé sur une platine micro-contrôle permettant de déplacer l'échantillon dans les trois directions de l'espace avec une précision de l'ordre de  $0.2 \mu\text{m}$ . L'échantillon peut être imagé sur une caméra CCD en intercalant un miroir sur le trajet optique. Ce miroir est bien sûr retiré lors de l'acquisition du signal de photoluminescence. Cette visualisation permet de se repérer sur l'échantillon et d'exciter un micro-objet choisi. Le signal de photoluminescence est collecté par le même objectif de microscope et envoyé sur un cube séparateur (50/50) insensible à la polarisation. Chacun des deux faisceaux est focalisé (lentille de focale 50 mm) sur la fente d'entrée d'un spectromètre à un réseau (1200 traits/mm,  $1 \mu\text{m}$  blaze) de focale 0.32 m. La résolution spectrale est de 0.6 nm avec des fentes de  $100 \mu\text{m}$ . Le faisceau en sortie est ensuite focalisé (lentille de focale 30 mm) sur la fenêtre de détection d'une photodiode à avalanche silicium (EGG) montée sur microcontrôles dans les trois directions de l'espace. La fenêtre a une taille de  $(100 \times 100 \mu\text{m})$ . Ces photodiodes supportent un maximum de 500000 coups/s avec un bruit interne inférieur à 100 coups/s. Elles ont un temps d'extinction, après la détection d'un photon, de l'ordre de 30 ns (raison pour laquelle on utilise un montage à deux photodiodes). Les photodiodes sont calfeutrées de tissu noir pour absorber tout signal parasite provenant du laboratoire. L'utilisation de deux spectromètres permet aussi de s'affranchir du problème de "cross-talk" des photodiodes; juste après la détection d'un photon, la photodiode émet un puissant signal lumineux. Ce signal peut, dans bien des montages, être détecté par l'autre photodiode et conduit à des événements de corrélation indésirables.

Les sorties des photodiodes sont reliées à un module de comptage de photons

(Stanford) puis aux entrées “start” et “stop” d’un analyseur (HP 53310A). Une ligne à retard de 20 ns est ajoutée en sortie de la diode reliée à l’entrée “stop”. Cet appareil réalise l’histogramme temporel des évènements “start-stop”, ce qui pour un grand nombre d’évènements accumulés donne à un facteur de normalisation près la corrélation temporelle du signal avec lui-même<sup>1</sup>. La résolution temporelle du montage est de 400 ps, limitée par le “jitter” des diodes. Les spectromètres sont motorisés et reliés à une interface permettant de faire des spectres.

Pour réaliser des expériences de microphotoluminescence résolues en temps il suffit de connecter l’entrée “start” de l’analyseur à une photodiode (cette expérience ne requiert qu’une seule photodiode) et l’entrée “stop” à un signal de synchronisation délivré par le laser.

Malgré la simplicité de sa mise en œuvre, ce montage présente une difficulté : le nombre de photons détectés est un paramètre critique. En effet le nombre d’évènements de corrélations varie comme le carré de l’intensité du signal détecté. Ainsi deux fois moins de signal correspond à un temps d’acquisition quatre fois plus long. Cette contrainte oblige à faire des arbitrages, notamment entre résolution spectrale (ou réjection de la lumière parasite) et flux du signal.

---

<sup>1</sup>Cette remarque est plus amplement discutée dans la partie 3.1.



# Annexe C

## Publications

- **E. Moreau**, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.-M Gérard and I. Abram, “Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, article 183601 (2001)
- **E. Moreau**, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.-M Gérard and I. Abram, “A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar”, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, pp. 2865-2867 (2001)
- I. Robert, **E. Moreau**, J.-M. Gérard, and I. Abram, DPC’01, International conference on *Dynamical Processes in Excited States of Solids*, “Towards a single-mode single photon source based on single quantum dots”, *J. Luminescence*, vol. 94-95, pp. 797-803 (2001)
- **E. Moreau**, I. Robert, J.-M. Gérard, and I. Abram, MSS10 on *Modulated Semiconductor Structures*, “Single-mode single photon source based on isolated InAs quantum boxes in micropillars”, *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 13, pp. 418-422 (2002)
- I. Robert, **E. Moreau**, M. Gallard, J.-M. Gérard, and I. Abram, “Triggered single photon sources”, à paraître dans *Physica E*
- I. Robert, **E. Moreau**, B. Gayral, J.-M. Gérard, and I. Abram, MSS10 on *Modulated Semiconductor Structures*, “Tailoring photon emission statistics from a single quantum box for quantum communications”, *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 13, pp. 606-609 (2002)
- I. Robert, **E. Moreau**, J.-M. Gérard, and I. Abram, Septième Colloque sur les lasers et l’optique quantique - COLOQ 7, “Cascade de photons dans les boîtes

- quantiques uniques”, Journal de Physique IV - Proceedings (EDP Sciences), vol. 12, Pr5-265 (2002)
- J.-M. Gérard, I. Robert, **E. Moreau**, and I. Abram, “Génération de photons uniques par une boîte quantique unique d’InAs en microcavité”, Journal de Physique IV - France - vol. 12, pp. 30 (2002)
  - J.-M. Gérard, B. Gayral, and **E. Moreau**, “On the efficiency of solid-state single photon sources”, Cond. Matt., quant-ph/0207115, (2002), soumis à Phys. Rev.
  - I. Robert-Philip, **E. Moreau**, S. Varoutsis, M. Gallart, I. Abram, and J.-M. Gérard, ICL’02, International conference on *Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter*, “Generation of non-classical light by single semiconductor quantum dots”, soumis à J. of Photoluminescence
  - M. Gallart, **E. Moreau**, S. Varoutsis, I. Robert-Philip, J.-M. Gérard, and I. Abram, ICSNN 2002, International conference on *Superlattices, Nano-structures and Nano-devices*, “Single photon emission from individual semiconductor nanostructures”, soumis à Physica E
  - I. Robert-Philip, **E. Moreau**, S. Varoutsis, J. Bylander, M. Gallart, I. Abram, and J.-M. Gérard, EXCON 2002, 5<sup>th</sup> International conference on *Excitonic Processes in Condensed Matter*, “Emission statistics of semiconductor quantum dots”, soumis à Journal of Nonlinear Optics

# Bibliographie

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, et N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, chichester ed. (John Wiley and Sons, 1999).
- [2] P. M. Petroff, A. Lorke, et A. Imamoglu, “Epitaxially self-assembled quantum dots,” *Physics Today* pp. 46–52 (2001).
- [3] Y. Arakawa et H. Sakaki, “Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current,” *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [4] L. Goldstein, F. Glas, J.-Y. Marzin, M. N. Charasse, et G. Le Roux, “Growth by molecular beam epitaxy and characterisation of InAs/GaAs strained-layer superlattices,” *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985).
- [5] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, et G. Bastard, “Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs,” *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716 (1994).
- [6] M. Grundmann *et al.*, “Ultrannarrow luminescence lines from single quantum dots,” *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4043 (1995).
- [7] J.-M. Gérard, O. Cabrol, et B. Sermage, “InAs quantum boxes : Highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si,” *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3123 (1996).
- [8] J.-M. Gérard, in *Confined electrons and photons : new physics and applications*, “Prospects of high-efficiency quantum boxes obtained by direct epitaxial growth”, p. 357. Voir Ref. [9].
- [9] E. Burstein et C. Weisbuch, *Confined electrons and photons : new physics and applications* (NATO ASI series, B240, Plenum, New York, 1995).
- [10] N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, V. A. Shchukin, P. S. Kop’ev, Z. Alferov, et D. Bimberg, “Quantum dot heterostructures : fabrication, properties, lasers,” *Semiconductors* **32**, 343 (1998), (Review).

- [11] J. L. Spithoven, J. Lorbacher, I. Manke, F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg, et M. Dähne-Prietsch, "Finite linewidth observed in photoluminescence spectra of individual  $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  quantum dots," *J. Vac. Sci. Technol. B* **17**, 1632 (1999).
- [12] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito, et K. Nishi, "Homogeneous linewidth broadening in a  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$  single quantum dot at room temperature investigated using a highly sensitive near-field scanning optical microscope," *Phys. Rev. B (Rapid Comm.)* **63**, 121304 (2001).
- [13] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shshchekin, et D. G. Deppe, "1.3  $\mu\text{m}$  room-temperature GaAs-based quantum-dot laser," *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2564 (1998).
- [14] A. E. Zhukov *et al.*, "Long-wavelength lasing from multiply stacked InAs/InGaAs quantum dots on GaAs substrates," *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1926 (1999).
- [15] K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, et I. Ishikawa, "High characteristic temperature of near-1.3- $\mu\text{m}$  InGaAs/GaAs quantum-dot lasers at room temperature," *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3349 (2000).
- [16] J.-M. Gérard et C. Weisbuch, French Patent (1990).
- [17] N. Grandjean *et al.* , *Solid State Comm.* **113**, 495 (2000).
- [18] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, et G. Weimann, "Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure," *Phys. Rev. Lett.* **73**, 8 (1994).
- [19] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaitre, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, et T. F. Krauss, "Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots," *Phys. Rev. B* **63** (2001).
- [20] L. Landin, M. Miller, M. E. Pistol, C. E. Pryor, et L. Samuelson, "Optical studies of individual InAs quantum dots in GaAs : few-particle effects," *Science* **280**, 262 (1998).
- [21] J.-M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg, "Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity," *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1110 (1998).
- [22] A. Imamoglu et Y. Yamamoto, "Turnstile device for heralded single photons : Coulomb blockade of electron and hole tunneling in quantum confined p-i-n heterojunctions," *Phys. Rev. Lett.* **72**, 210 (1994).

- [23] H. J. Kimble, M. Dagenais, et L. Mandel, "Photon antibunching in resonance fluorescence," *Phys. Rev. Lett.* **39**, 691 (1977).
- [24] P. Grangier, G. Roger, et A. Aspect, "Experimental evidence for a photon anti-correlation effect on a beam splitter : a new light on single-photon interferences," *Europhys. Lett.* **1**, 173 (1986).
- [25] A. Aspect, G. Roger, S. Reynaud, J. Dalibard, et C. Cohen-Tannoudji, "Time correlations between the two sidebands of the resonance fluorescence triplet," *Phys. Rev. Lett.* **45**, 617 (1980).
- [26] A. Aspect, P. Grangier, et G. Roger, "Experimental tests of realistic local theories via Bell's theorem," *Phys. Rev. Lett.* **47**, 460 (1981).
- [27] P. Goy, J.-M. Raimond, M. Gross, et S. Haroche, "Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission," *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1903 (1983).
- [28] J.-M. Gérard, D. Barrier, et J.-Y. Marzin, in *Microcavities and photonic bandgaps : physics and applications*, "InAs quantum boxes : active probes for air/GaAs photonic bandgap microstructures", p. 219. Voir Ref. [125].
- [29] J.-M. Gérard et B. Gayral, "Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities," *J. Lightwave Technol.* **17**, 2089 (1999).
- [30] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, et A. Imamoglu, "A quantum dot single-photon turnstile device," *Science* **290**, 2282 (2000).
- [31] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, et Y. Yamamoto, "Triggered single photons from a quantum dot," *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1502 (2001).
- [32] B. Gayral, J.-M. Gérard, B. Sermage, A. Lemaître, et C. Dupuis, "Time resolved-probing of the Purcell effect for InAs quantum dots in GaAs microdisks," *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2828 (2001).
- [33] L. A. Graham, D. L. Huffaker, et D. G. Deppe, "Spontaneous lifetime control in a native-oxide-apertured microcavity," *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2408 (1999).
- [34] L. C. Andreani, G. Panzarini, et J.-M. Gérard, "Strong coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : theory," *Phys. Rev. B* **60**, 0163 (1999).
- [35] C. H. Bennett et G. Brassard, "Quantum cryptography : public key distribution and coin tossing," *Proceedings of IEEE International Conference on Computer Systems and Signal Processing*, Bangalore, India p. 175 (1984).



- [36] C. H. Bennett, G. Brassard, et A. K. Eckert, “Quantum cryptography,” *Sci. Am.* **267**, 26 (1992).
- [37] B. Schneier, *Applied Cryptography* (Wiley, New York, 1996), 2nd ed.
- [38] H.-K. Lo, S. Popescu, et T. Spiller, *Introduction to Quantum Computation and Information* (World Scientific, Singapore, 1998).
- [39] G. Brassard, N. Lütkenhaus, T. Moor, et B. C. Sanders, “Limitations on practical quantum cryptography,” *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1330 (2000).
- [40] A. Muller, J. Breguet, et N. Gisin, “Experimental demonstration of quantum cryptography using polarized photons in optical fibre over more than 1 km,” *Europhys. Lett.* **23**, 383 (1993).
- [41] P. D. Townsend, J. G. Rarity, et P. R. Tapster, “Single photon interference in 10 km long optical fibre interferometer,” *Elec. Lett.* **29**, 634 (1993).
- [42] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit, et H. Talon, “Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid,” *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1516 (1992).
- [43] B. Lounis et W. E. Moerner, “Single photons on demand from a single molecule at room temperature,” *Nature* **407**, 491 (2000).
- [44] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, et U. P. Wild, “Nonclassical photon statistics in single-molecule fluorescence at room temperature,” *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000).
- [45] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, et H. Weinfurter, “Stable solid-state source of single photons,” *Phys. Rev. Lett.* **85**, 290 (2000).
- [46] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, et P. Grangier, “Non-classical radiation from diamond nanocrystals,” *Phys. Rev. A* **64**, 061802 (2001).
- [47] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.-M. Gérard, et I. Abram, “A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar,” *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865 (2001).
- [48] J. G. Rarity, S. C. Kitson, et P. R. Tapster, in *Confined photon systems, fundamentals and applications*, “Single photon sources and applications”, p. 352. Voir Ref. [52].
- [49] N. Lütkenhaus, “Security against individual attacks for realistic quantum key distribution,” *Phys. Rev. A* **61**, 052304 (2000).

- [50] B. Huttner, N. Imoto, N. Gisin, et T. Mor, “Quantum cryptography with coherent states,” *Phys. Rev. A* **51**, 1863 (1995).
- [51] J. E. M. *et al*, in *Confined photon systems, fundamentals and applications*, “Limitations of optical communications”. Voir Ref. [52].
- [52] H. Benisty, J.-M. Gérard, R. Houdré, J. Rarity, et C. Weisbuch, *Confined photon systems, fundamentals and applications* (Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 1999).
- [53] E. Knill, R. Laflamme, et G. J. Milburn, “A scheme for efficient quantum computation with linear optics,” *Nature* **409**, 46 (2001).
- [54] C. K. Hong, Z. Y. Ou, et L. Mandel, “Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference,” *Phys. Rev. Lett* **59**, 2044 (1987).
- [55] J. Kim, O. Benson, H. Kan, et Y. Yamamoto, “A single-photon turnstile device,” *Nature* **397**, 500 (1999).
- [56] C. K. Hong et L. Mandel, “Experimental realization of a localized one-photon state,” *Phys. Rev. Lett.* **56**, 58 (1986).
- [57] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, et N. Gisin, “Violation of Bell inequalities by photons more than 10 km apart,” *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3563 (1998).
- [58] A. Kuhn, M. Hennrich, T. Bundo, et G. Rempe, “Controlled generation of single photons from a strongly coupled atom-cavity system,” *Appl. Phys. B* **69**, 373 (1999).
- [59] F. Diedrich et H. Walther, “Nonclassical radiation of a single stored ion,” *Phys. Rev. Lett.* **58**, 203 (1987).
- [60] W. P. Ambrose, P. M. Goodwin, J. C. Martin, et R. A. Keller, “Single-molecule detection and photochemistry on a surface using near-field optical-excitation,” *Phys. Rev. Lett.* **72**, 160 (1994).
- [61] S. C. Kitson, P. Jonsson, J. G. Rarity, et P. R. Tapster, “Intensity fluctuation spectroscopy of small numbers of dye molecules in a microcavity,” *Phys. Rev. A* **58**, 620 (1998).
- [62] C. Brunel, B. Lounis, P. Tamarat, et M. Orrit, “Triggered source of single photons based on controlled single molecule fluorescence,” *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2722 (1999).
- [63] A. Beveratos, R. Brouri, J.-P. Poizat, et P. Grangier, “Bunching and antibunching from single NV color centers in diamond,” *Quant. Phys.* (2000).

- [64] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, et P. Grangier, "Single-photon generation by pulsed excitation of a single dipole," *Phys. Rev. A* **62**, 063817 (2000).
- [65] P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, et S. K. Buratto, "Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature," *Nature* **406**, 968 (2000).
- [66] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, et M. Pepper, "Electrically driven single-photon source," *Science* **295**, 102 (2002).
- [67] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, et E. Hu, "Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot," *Phys. Rev. B* **63**, 121312 (2001).
- [68] V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, et G. Björk, "Single quantum dots emit single photons at a time : antibunching experiments," *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2476 (2001).
- [69] J.-M. Gérard, J.-B. Génin, J. Lefebvre, J.-M. Moison, N. Lebouché, et F. Barthe, "Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes," *J. Crystal Growth* **150**, 351 (1995).
- [70] J.-M. Gérard, J.-Y. Marzin, G. Zimmermann, A. Ponchet, O. Cabrol, D. Barrier, B. Jusserand, et B. Sermage, "InAs/GaAs quantum boxes obtained by self-organized growth : intrinsic electronic properties and applications," *Solid-State Electronics* **40**, 807 (1996).
- [71] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, et Y. Arakawa, "Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- [72] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle, et G. Weimann, "Photoluminescence from a single GaAs/AlGaAs quantum dot," *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3216 (1992).
- [73] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, et D. Park, "Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots," *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3005 (1996).
- [74] T. Saiki, K. Nishi, et M. Ohtsu, "Low temperature near-field photoluminescence spectroscopy of InGaAs single quantum dots," *J. Appl. Phys.* **37**, 1638 (1998).

- [75] D. Leonard, K. Pond, et P. M. Petroff, "Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs," *Phys. Rev. B* **50**, 11687 (1994).
- [76] B. Gayral, "Controlling spontaneous emission dynamics in semiconductor microcavities," *Annales de la Physique* **26**, 2 (2001).
- [77] G. W. Bryant, "Biexciton binding in quantum boxes," *Phys. Rev. B* **1243** (1990).
- [78] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, D. Spektor, J. M. Garcia, et P. M. Petroff, "Multiexciton spectroscopy of a single self-assembled quantum dot," *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4991 (1998).
- [79] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, et P. M. Petroff, "Photoluminescence of charged InAs self-assembled quantum dots," *Phys. Rev. B* **58**, 3597 (1998).
- [80] P. Lelong et G. Bastard, "Binding energies of excitons and charged excitons in GaAs/Ga(In)As quantum dots," *Solid-State Commun.* **98**, 819 (1996).
- [81] P. Lelong, O. Heller, et G. Bastard, *Solid State Electronics* **42**, 1251 (1998).
- [82] C. Santori, G. S. Solomon, M. Pelton, et Y. Yamamoto, "Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an InAs quantum dot," *Phys. Rev. B* **65**, 073310 (2002).
- [83] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi, et D. Hommel, "Biexciton versus exciton lifetime in a single semiconductor quantum dot," *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4417 (1999).
- [84] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, et M. Pepper, "Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots," *Phys. Rev. B (Rapid Comm.)* **64**, 201302 (2001).
- [85] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, et D. Park, "Homogeneous linewidths in the optical spectrum of a single Gallium Arsenide quantum dot," *Science* **273**, 87 (1996).
- [86] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, et D. Bimberg, "Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157401 (2001).
- [87] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, P. Roussignol, J. P. Reithmaier, et J. M. Gérard, "Decoherence in single semiconductor quantum dots : towards a control of the environment effects," *Phys. Rev. B* **66**, 041306 (2002).

- [88] K. Asaoka, Y. Ohno, S. Kishimoto, et T. Mituzani, "Microscopic photoluminescence study of InAs single quantum dots grown on (100) GaAs," *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 546 (1999).
- [89] T. Takagahara, "Electron-phonon interactions and excitonic dephasing in semiconductor nanocrystals," *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3577 (1993).
- [90] X.-Q. Li et Y. Arakawa, "Optical linewidths in an individual quantum dot," *Phys. Rev. B* **60**, 1915 (1999).
- [91] K. Matsuda, T. Saiki, H. Saito, et K. Nishi, "Room-temperature photoluminescence spectroscopy of self-assembled  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  single quantum dots by using highly sensitive near-field scanning optical microscope," *Appl. Phys. Lett.* **76**, 6951 (2000).
- [92] H. Kamada, H. Ando, J. Temmyo, et T. Tamamura, "Excited-state optical transitions of excitons and biexcitons in a single  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum disk," *Phys. Rev. B* **58**, 16243 (1998).
- [93] E. S. Moskalenko, K. F. Karlsson, P. O. Holtz, B. Monemar, W. V. Schoenfeld, J. M. Garcia, et P. M. Petroff, "Influence of excitation energy on charged exciton formation in self-assembled InAs single quantum dots," *Phys. Rev. B* **64**, 085302 (2001).
- [94] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, et F. Laloë, *Mécanique quantique*, hermann ed. (1996), Vol. I.
- [95] R. H. Brown et R. Q. Twiss, "Correlation between photons in two coherent beams of light," *Nature* **177**, 27 (1956).
- [96] M. C. Teich, B. E. A. Saleh, I. C. Khoo, G. P. Agrawal, Y. A. Kravtsov, et K. Creath, *Progress in optics*, e. wolf ed. (North Holland, 1988), Vol. 26.
- [97] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, et P. Grangier, "Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond," *Opt. Lett.* **25**, 1294 (2000).
- [98] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, et B. Roulet, *Physique Statistique* (Hermann, 1989).
- [99] D. V. Regelman, U. Mizrahi, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld, et P. M. Petroff, "Semiconductor quantum dot : a light source of multicolor photons with tunable statistics," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 257401 (2001).

- [100] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard, et I. Abram, “Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots,” *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183601 (2001).
- [101] A. Aspect, P. Grangier, et G. Roger, “Experimental realization of Einstein-Podolsky-Rosen-Bohm *Gedankenexperiment*: a new violation of Bell’s inequalities,” *Phys. Rev. Lett.* **49**, 91 (1982).
- [102] C. Cohen-Tannoudji, *Cours d’Optique Quantique* (Collège de France, Paris, 1979), lecture VI, p. 9.
- [103] D. T. Pegg, R. Loudon, et P. L. Knight, “Correlations in light emitted by three-level atoms,” *Phys. Rev. A* **33**, 4085 (1986).
- [104] J. Dalibard et S. Reynaud, *New Trends in Atomic Physics-Les Houches, Session XXXVIII, 1982*, g. grynberg and r. stora ed. (Elsevier Publishers, 1984), p. 181.
- [105] P. W. H. Pinkse, T. Fischer, P. Maunz, T. Puppe, et G. Rempe, “How to catch an atom with single photons,” *Journal of Modern Optics* **47**, 2769 (2000).
- [106] A. C. Doherty, T. W. Lynn, C. J. Hood, et H. J. Kimble, “Trapping of single atoms with single photons in cavity QED,” *Phys. Rev. A* **63**, 013401 (2001), quant-ph/0006015.
- [107] S. Tanzilli, H. de Riedmatten, W. Tittel, H. Zbinden, P. Baldi, M. de Micheli, D. B. Ostrowsky, et N. Gisin, “Highly efficient photon-pair source using a Periodically Poled Lithium Niobate waveguide,” *Electron. Lett.* **37**, 26 (2001).
- [108] A. Kiraz, S. Fälth, C. Becher, B. Gayral, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, et A. Imamoglu, “Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot,” *Cond. Mat.* (2001).
- [109] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, et Y. Yamamoto, “Regulated and entangled photons from a single quantum dot,” *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2513 (2000).
- [110] Y. Toda, S. Shinomori, K. Suzuki, et Y. Arakawa, “Polarized photoluminescence spectroscopy of single self-assembled InAs quantum dots,” *Phys. Rev. B* **58** (1998).
- [111] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, et J. P. Reithmaier, “Zeeman splitting of excitons and biexcitons in single  $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$  self-assembled quantum dots,” *Phys. Rev. B* **58**, 7508 (1998).

- [112] M. Bayer, T. Gutbrod, A. Forchel, V. D. Kulalovskii, A. Gorbunov, M. Michel, R. Steffen, et K. H. Wang, "Exciton complexes in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots," *Phys. Rev. B* **58**, 4740 (1998).
- [113] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, et J. M. Gérard, "Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots," *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1634 (2001).
- [114] D. Birkedal, K. Leosson, et J. M. Hvam, "Long lived coherence in self-assembled quantum dots," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 227401 (2001).
- [115] P. Borri, W. Langbein, J. Mørk, J. M. Hvam, F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, et D. Bimberg, "Dephasing in  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  quantum dots," *Phys. Rev. B* **60**, 7784 (1999).
- [116] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, et Y. Yamamoto, "Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot," *Cond. Mat.* (2001).
- [117] W. L. Barnes, G. Björk, J.-M. Gérard, P. Jonsson, J. A. E. Wasey, P. T. Worthing, et V. Zwiller, "Solid-state single photon sources : light collection strategies," *European J. Phys. D* **18** (2002).
- [118] E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electrodynamics," *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2059 (1987).
- [119] E. Yablonovitch, "Photonic band-gap structures," *J. Opt. Soc. Am.B* **10**, 283 (1993), n°2.
- [120] S. Noda, K. Tomoda, N. Yamamoto, et A. Chutinan, "Full three-dimensional photonic bandgap crystals at near-infrared wavelengths," *Science* **289**, 604 (2000).
- [121] J. L. Jewell, A. Scherer, S. L. McCall, A. C. Gossard, et J. H. English, "GaAs-AlAs monolithic microresonators arrays," *Appl. Phys. Lett.* **51**, 94 (1987).
- [122] J.-M. Gérard et B. Gayral, "InAs quantum dots : artificial atoms for solid-state cavity-quantum electrodynamics," *Physica E* **9**, 131 (2001).
- [123] I. Robert, E. Moreau, J. M. Gérard, et I. Abram, "Towards a single-mode single photon source based on single quantum dots," *J. Luminescence* **94**, 797 (2001).
- [124] E. M. Purcell, "Spontaneous emission probabilities at radio frequencies," *Phys. Rev.* **69**, 681 (1946).
- [125] J. Rarity et C. Weisbuch, *Microcavities and Photonic Bandgaps* (NATO ASI series E324, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1996).

- [126] R. Loudon, *The quantum theory of light* (Clarendon Press, 1973).
- [127] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, et G. Grynberg, *Atom-photon interactions* (Wiley, 1992).
- [128] S. Haroche et D. Kleppner, "Cavity quantum electrodynamics," *Phys. Today* **42**, 24 (1989).
- [129] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, et R. A. Logan, "Whispering-gallery mode microdisk lasers," *Appl. Phys. Lett.* **60**, 289 (1992).
- [130] T. Baba, T. Hamano, F. Koyama, et K. Iga, "Spontaneous emission factor of a microcavity DBR surface-emitting laser," *IEEE J. Quant. Electron.* **27**, 1347 (1991).
- [131] S. Cortez, O. Krebs, P. Voisin, et J. M. Gérard, "Polarization of the interband optical dipole in InAs/GaAs self-organized quantum dots," *Phys. Rev. B* **63**, 233306 (2001).
- [132] B. Gayral, J.-M. Gérard, A. Lemaître, C. Dupuis, L. Manin, et J.-L. Pelouard, "High-Q wet-etched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes," *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1908 (1999).
- [133] M. V. Artemyev, U. Woggon, R. Wannemacher, H. Jachinski, et W. Langbein, "Light trapped in a photonic dot : microspheres act as a cavity for quantum dot emission," *Nano Letters* **1**, 309 (2001).
- [134] R. Baets, P. Bienstman, et R. Bockstaele, in *Confined photon systems, fundamentals and applications*, "Basics of dipole emission from a planar cavity", p. 38. Voir Ref. [52].
- [135] V. Savona, in *Confined photon systems, fundamentals and applications*, "Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells", p. 173. Voir Ref. [52].
- [136] J.-M. Gérard, D. Barrier, J.-Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, V. Thierry-Mieg, et T. Rivera, "Quantum boxes as active probes as active probes for photonic microstructures : the pillar microcavity case," *Appl. Phys. Lett.* **69**, 449 (1996).
- [137] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald, et A. Forchel, "Inhibition and enhancement of the spontaneous emission of quantum dots in structured microresonators," *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3168 (2001).
- [138] T. Rivera, J.-P. Debray, J.-M. Gérard, B. Legrand, et L. Manin-Ferlazzo, "Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.* **74**, 911 (1999).



- [139] H. Rigneault, J. Broudic, B. Gayral, et J.-M. Gérard, “Far field radiation from quantum boxes located in pillar microcavities,” *Optics Letters* **26**, 1595 (2001).
- [140] B. Gayral, J.-M. Gérard, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg, “Optical study of GaAs/AlAs pillar microcavities with elliptical cross section,” *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1421 (1998).
- [141] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, et Y. Arakawa, “Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity,” *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314 (1992).
- [142] H. De Neve, J. Blondelle, P. Van Daele, P. Demeester, R. Baets, et G. Borghs, “Recycling of guided mode light emission in planar microcavity light emitting diodes,” *Appl. Phys. Lett.* **70**, 799 (1997).
- [143] D. L. Huffaker et D. G. Deppe, “Improved performance of oxide-confined vertical-cavity surface-emitting lasers using a tunnel injection active region,” *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1449 (1997).
- [144] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefèvre-Seguin, J.-M. Raimond, et S. Haroche, “Very low threshold whispering-gallery-mode microsphere laser,” *Phys. Rev. A* **54**, R1777 (1996).
- [145] B. Gayral et J.-M. Gérard, “Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in high-Q wet-etched microdisks,” *Physica E* **7**, 641 (2000).
- [146] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, et P. M. Petroff, “Charged excitons in self-assembled semiconductor quantum dots,” *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997).
- [147] J.-M. Gérard et B. Gayral, “Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities,” *J. Lightwave Technol.* **17**, 2089 (1999).
- [148] M. V. Artemyev et U. Woggon, “Quantum dots in photonic dots,” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1353 (2000).
- [149] G. S. Solomon, M. Pelton, et Y. Yamamoto, “Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity,” *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3903 (2001).
- [150] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld, et P. M. Petroff, “Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure,” *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3932 (2001).

- [151] D. I. Babic, Y. Chung, N. Dagli, et J. E. Bowers, "Modal reflection of quarter-wave mirrors in vertical-cavity lasers," *IEEE J. Quant. Elect.* **29**, 1950 (1993).
- [152] B. J. Thibeault, T. A. Strand, T. Wipiejewski, M. G. Peters, D. B. Young, S. W. Corzine, L. A. Coldren, et J. W. Scott, "Evaluating the effects of optical and carrier losses in etched-post vertical cavity lasers," *J. Appl. Phys.* **78**, 5871 (1995).
- [153] T. Tezuka et S. Nunoue, "Diameter-dependent optical losses in pillar microcavities," *J. Appl. Phys.* **79**, 2875 (1996).
- [154] R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Gailhanou, et M. Ilegems, "Ultrahigh finesse microcavity with distributed Bragg reflectors," *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1883 (1994).
- [155] S. M. Mansfield et G. S. Kino, "High collection efficiency in fluorescence microscopy with a solid immersion lens," *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2615 (1990).
- [156] K. Koyama, M. Yoshita, M. Baba, T. Suemoto, et H. Akiyama, "High collection efficiency in fluorescence microscopy with a solid immersion lens," *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1667 (1999).
- [157] N. Tsurumachi, M. Abe, M. Arakawa, T. Yoda, T. Hattori, J. Qi, Y. Masumoto, et H. Nakatsuka, "Time response of one-dimensional photonic crystals with a defect layer made of semiconductor quantum dots," *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** (1999).
- [158] J. S. Foresi, P. R. Villeneuve, J. Ferrera, E. R. Thoen, G. Steinmeyer, S. Fan, J. D. Joannopoulos, L. C. Kimerling, H. I. Smith, et E. P. Ippen, "Photonic-bandgap microcavities in optical waveguides," *Nature* **390**, 143 (1997).
- [159] O. J. Painter, A. Husain, A. Scherer, J. D. O'Brien, I. Kim, et P. D. Dapkus, "Room temperature photonic crystal defect lasers at near-infrared wavelengths in InGaAsP," *IEEE J. Lightwave Technol.* **17**, 2082 (1999).
- [160] K. Iga, F. Koyama, et S. Kinoshita, "Surface emitting semiconductor lasers," *IEEE J. Quant. Electron.* **24**, 1845 (1988).
- [161] J. L. Jewell, A. Scherer, S. L. McCall, Y. H. Lee, S. Walker, J. P. Harbison, et L. T. Florez, "Low-threshold electrically pumped vertical-cavity surface-emitting microlasers," *Electron. Lett.* **25**, 1123 (1989).
- [162] T. C. Ralph, A. G. White, W. J. Munro, et G. J. Milburn, "Simple scheme for efficient linear optics quantum gates," *Phys. Rev. A* **65**, 012314 (2001).

- [163] H. Lee, P. Kok, N. J. Cerf, et J. P. Dowling, “Linear optics and projective measurements alone suffice to create large-photon-number path entanglement,” *Phys. Rev. A* **65**, 030101 (2002).
- [164] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, et F. Henneberger, “Photon beats from a single semiconductor quantum dot,” *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3172 (2001).
- [165] J. R. Guest, T. H. Stievater, G. Chen, E. A. Tabak, B. G. Orr, D. G. Steel, D. Gammon, et D. S. Katzer, “Near-field coherent spectroscopy and microscopy of a quantum dot system,” *Science* **293**, 2224 (2001).
- [166] Z. Y. Ou, E. C. Cage, B. E. Magill, et L. Mandel, “Fourth-order interference technique for determining the coherence time of a light beam,” *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 100 (1989).