



HAL
open science

Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque

Emmanuelle Peter

► **To cite this version:**

Emmanuelle Peter. Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque. Physique [physics]. Université Paris Sud - Paris XI, 2006. Français. NNT : . tel-00129086

HAL Id: tel-00129086

<https://theses.hal.science/tel-00129086>

Submitted on 5 Feb 2007

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.

LABORATOIRE DE PHOTONIQUE ET DE NANOSTRUCTURES

THESE DE DOCTORAT de L'UNIVERSITE PARIS XI

Spécialité : Lasers et Matière

présentée par :

Emmanuelle PETER

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS XI

Sujet de la thèse :

**Couplage fort exciton-photon
pour une boîte quantique de GaAs en microdisque**

Soutenue le 2 octobre 2006 devant le jury composé de :

Philippe Boucaud	Président
Jean-Michel Gérard	Examineur
Khaled Karrai	Rapporteur
Xavier Marie	Rapporteur
Jean-Michel Raimond	Examineur
Pascale Senellart	Encadrante (Invitée)
Paul Voisin	Directeur de Thèse

LABORATOIRE DE PHOTONIQUE ET DE NANOSTRUCTURES

THESE DE DOCTORAT de L'UNIVERSITE PARIS XI

Spécialité : Lasers et Matière

présentée par :

Emmanuelle PETER

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS XI

Sujet de la thèse :

**Couplage fort exciton-photon
pour une boîte quantique de GaAs en microdisque**

Soutenue le 2 octobre 2006 devant le jury composé de :

Philippe Boucaud	Président
Jean-Michel Gérard	Examineur
Khaled Karrai	Rapporteur
Xavier Marie	Rapporteur
Jean-Michel Raimond	Examineur
Pascale Senellart	Encadrante (Invitée)
Paul Voisin	Directeur de Thèse

Remerciements

Je remercie toutes les personnes qui ont contribué à ce travail de thèse, réalisé au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, dans des conditions exceptionnelles.

Je remercie le directeur du LPN, Jean-Yves Marzin de m'avoir accueillie et pour l'intérêt qu'il a toujours porté à mon travail. Je remercie chaleureusement mon directeur de thèse Paul Voisin, pour la confiance qu'il m'a toujours accordée.

Je tiens à remercier tous les membres du jury ; je leur suis très reconnaissante de l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. En particulier, je remercie Khaled Karrai et Xavier Marie pour l'enthousiasme avec lequel ils ont effectué leur travail de rapporteurs. Je remercie également Philippe Boucaud de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury. Je suis reconnaissante à Jean-Michel Raimond d'avoir accepté d'être examinateur de ma thèse, et d'avoir ainsi en quelque sorte achevé son suivi de mes études ayant auparavant été, tout d'abord membre de mon jury d'entrée au MIP, puis directeur du MIP, et professeur d'électromagnétisme et relativité, le seul à savoir énoncer les quadrivecteurs en yodle, un souvenir inoubliable ! Je remercie à plus d'un titre Jean-Michel Gérard, à l'origine de tellement de choses dans les boîtes quantiques en cavité, pour avoir toujours soutenu mon travail et m'avoir toujours encouragée.

Je ne remercierai jamais assez Pascale Senellart, qui a encadré ces 3 années de travail. Son enthousiasme, sa disponibilité, et ses qualités scientifiques ont été un véritable moteur pour ma thèse. Son dynamisme fut une source d'énergie très abondante dans laquelle j'ai puisé quotidiennement. J'espère que les résultats que nous avons obtenus auront récompensé son investissement.

Je suis également très heureuse d'avoir travaillé avec Jacqueline Bloch pendant le congé de maternité de Pascale. J'ai beaucoup apprécié ses qualités humaines et scientifiques. Nous avons passé ensemble des moments très agréables et toujours trop courts.

Je remercie très chaleureusement les épitaxieurs qui ont fabriqué les échantillons : David Martrou, car sans son étude très approfondie de la croissance des boîtes quantiques naturelles, je n'aurais certainement pas observé le couplage fort. Aristide Lemaître, qui a non seulement effectué toutes les études préliminaires et non moins importantes, et qui m'a plus d'une fois donné d'excellents conseils, en salle blanche et en salle de manip. Merci également à Antonella Cavanna pour sa contribution à la plupart des échantillons à boîtes quantiques que j'ai étudiés.

Je remercie très chaleureusement Isabelle Sagnes, envers qui je ne peux que rester admirative. Son énergie et son savoir-faire ont permis de réaliser de nombreux miracles technologiques. Comme pour de nombreux thésards, son expertise me fut très précieuse. Sa façon de travailler restera pour moi une source d'inspiration et de méditation.

Je remercie également Olivier Krebs, qui ne m'a jamais refusé son aide et ses conseils. Merci aux thésards de l'équipe Goss : Julien Hours, à qui je souhaite de tout mon cœur de s'épanouir dans la voie qu'il a choisie, Sabine Laurent, avec qui j'ai la chance de travailler aujourd'hui en post-doc, Mathieu Perrin pour les discussions toujours si enrichissantes, et Benoît Eble, toujours si attentif aux autres. Merci également aux thésards de l'équipe PEQ, mis à contribution pour les manips de corrélations : Spyros Varoustis, Rémy Braive, et Stéphane Laurent.

Je remercie également Isabelle Robert-Philip pour sa disponibilité et sa gentillesse, qualités qui rendent les discussions avec elles si agréables.

Merci à Karine Meunier, pour m'avoir initiée à la PL résolue en temps, et partagé mon bureau. Merci également à Bernard Sermage.

Merci à Gilles Patriarche pour les mesures TEM, complément essentiel des mesures réalisées en optique.

Merci à Gérard Bastard pour les discussions sur les phonons acoustiques.

Je remercie toutes les personnes qui ont apporté une pierre à l'édifice technologique des boîtes quantiques en cavité et toutes celles qui m'ont patiemment formée en salle blanche : Luc Le Gratiet, Christophe Dupuis, Nathalie Bardou, David Chouteau, Jean-Claude Esnault, Laurent Couraud, Laetitia Leroy.

Je remercie finalement toutes les personnes du LPN, qui réunissent des savoirs et savoir-faire très nombreux dans un environnement scientifique exceptionnel.

Merci à Angela Vasanelli, pour le travail que nous avons commencé ensemble il y a maintenant 4 ans, que j'ai la chance et le bonheur de reprendre aujourd'hui, et aussi pour sa fidèle amitié.

Je remercie du fond du cœur Bernard Diu, qui fut toujours mon ange gardien, et qui m'a épaulée depuis le jour où, à 15 ans, je pénétrais dans son bureau pour demander l'inscription à l'académie de Paris en premier cycle de physique avec des horaires compatibles avec ma pratique de la musique. Merci également à son épouse pour toute son affection.

Merci à tous mes proches, pour leur soutien, leurs encouragements et leur compréhension pendant ces 3 années. Merci d'avoir su comprendre à quel point la recherche prend de la place dans la vie de celui qui y pénètre.

A Philippe.

Table des matières

Introduction	11
1 Electroynamique quantique en cavité et boîtes quantiques	13
1.1 Emission spontanée en cavité	13
1.1.1 Système de Jaynes-Cummings	13
1.1.2 Hamiltonien de Jaynes-Cummings	14
1.1.3 Energies-propres et états-propres	14
1.1.4 Emission spontanée de l'émetteur dans la cavité	16
1.1.5 Introduction de la relaxation	17
1.2 Bref aperçu des cavités semi-conductrices 0D	21
1.2.1 Micropiliers	21
1.2.2 Cristaux photoniques	22
1.2.3 Microdisques	22
1.3 Emetteur : exciton d'une boîte quantique unique de GaAs	23
1.3.1 Notion d'exciton	24
1.3.2 Force d'oscillateur de l'exciton : influence du confinement	28
1.3.3 Intérêt des boîtes quantiques de GaAs pour le couplage fort	31
1.4 Etat de l'art en 2003 - Expériences d'EDQC en régime de couplage faible	31
1.4.1 Exaltation/inhibition de l'émission spontanée	31
1.4.2 Emission spontanée quasi-monomode	32
1.4.3 Génération de photons uniques indiscernables	32
2 Présentation et caractérisation des échantillons étudiés	35
2.1 Croissance épitaxiale	35
2.1.1 Premier échantillon (nom de nomenclature S614)	35
2.1.2 Second échantillon (nom de nomenclature TC00)	36
2.2 Analyses structurales	36
2.2.1 Premier échantillon (S614)	36
2.2.2 Second échantillon (TC00)	38
2.3 Caractérisation optique	40
2.3.1 Macro-photoluminescence	40
2.3.2 Micro-photoluminescence	42
2.4 Quelques repères bibliographiques sur les boîtes quantiques naturelles de GaAs	47

3	Force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs	49
3.1	Principe de la micro-photoluminescence résolue en temps	49
3.1.1	Dispositif expérimental	49
3.1.2	Analyse spectrale et temporelle : exemple du puits quantique.	50
3.2	Mise en évidence de la corrélation entre force d'oscillateur et taille de boîtes quantiques	53
3.2.1	Mesure des temps de vie radiatifs	53
3.2.2	Lien entre le temps de vie radiatif et la taille latérale de la boîte quantique .	57
3.3	Mise en évidence de la cascade radiative	61
3.3.1	Evolution de la dynamique d'émission avec la puissance d'excitation	61
3.3.2	Mise en évidence de la re-capture du biexciton	64
3.4	Dynamique d'émission des grandes boîtes quantiques sous excitation non-résonante .	65
3.4.1	Temps de déclin de l'émission excitonique dans les grandes boîtes quantiques	66
3.4.2	Synthèse	70
3.5	Modélisation de la dynamique des boîtes quantiques de GaAs	70
3.5.1	Description du modèle	70
3.5.2	Modélisation de la dynamique des petites boîtes quantiques	72
3.5.3	Modélisation de la dynamique des grandes boîtes quantiques	75
3.5.4	Que donne ce modèle pour les boîtes quantiques d'InAs ?	79
3.6	Mesures complémentaires : statistique d'émission	82
3.6.1	Principe des mesures de corrélation	82
3.6.2	Petites boîtes quantiques	83
3.6.3	Grandes boîtes quantiques	84
4	Effet de l'environnement sur les raies d'émission de l'exciton et du biexciton	87
4.1	Effet de l'environnement sur la raie d'émission excitonique	87
4.1.1	Mise en évidence expérimentale du couplage aux phonons acoustiques	88
4.1.2	Estimation du couplage exciton-phonon	94
4.1.3	Etude de la raie zéro-phonon	98
4.1.4	Calcul de la raie d'émission excitonique à différentes températures.	100
4.2	Effet de l'environnement sur la raie d'émission biexcitonique	104
4.2.1	Interaction avec les phonons acoustiques	104
4.2.2	Interaction coulombienne du biexciton avec l'environnement électrostatique .	106
5	Cavités à haut facteur de qualité et petit volume effectif : les microdisques	113
5.1	Bref rappel historique	113
5.2	Description théorique des modes de galerie dans les microdisques	114
5.2.1	Approche simplifiée de l'optique géométrique	114
5.2.2	Description des modes de galerie	115
5.2.3	Caractéristiques théoriques des modes de galerie	123
5.3	Réalisation technologique	125
5.3.1	Technologie utilisée au début de cette thèse	126
5.3.2	Améliorations apportées aux microdisques	128
5.3.3	Microdisque sur AlOx	129
5.4	Caractérisation optique des modes de galerie dans les microdisques sur AlOx	132
5.4.1	Caractérisation optique des modes de galerie	132
5.4.2	Facteur de qualité	134

5.4.3	Identification des modes de galerie	136
5.5	Boîtes Quantiques de GaAs en microdisques	138
5.5.1	Facteur de qualité et volume effectif : choix du diamètre optimal	138
5.5.2	Boîtes quantiques de GaAs en microdisques	142
5.5.3	Diagramme de rayonnement des modes de galerie	143
6	Observation du couplage fort exciton-photon	153
6.1	Conditions pratiques d'observation du régime de couplage fort	153
6.1.1	Dédoublment de Rabi	153
6.1.2	Accord spatial	155
6.1.3	Accord spectral	157
6.2	Observation du régime de couplage fort	159
6.2.1	Signature spectrale : l'anticroisement	159
6.2.2	Signature de l'intrication lumière-matière sur les largeurs de raie	162
6.2.3	Etude du doublet de Rabi	163
6.3	Etat de l'art du couplage fort dans les systèmes 0D semi-conducteurs	164
6.3.1	Boîte quantique d'InAs en cristaux photoniques	164
6.3.2	Boîte quantique d'InGaAs en micropiliers	167
6.3.3	Nanotige de CdSe couplée à une microsphère de polystyrène	168
6.3.4	Discussion	170
7	Bilan et Perspectives	173
7.1	Bilan	173
7.2	Du hasard au déterminisme	173
7.2.1	Contrôle de l'accord spatial	174
7.2.2	Contrôle de l'accord spectral	175
7.3	Perspectives d'expériences d'EDQC en régime de couplage fort avec des boîtes quantiques	177
7.3.1	Statistique d'émission des états du doublet de Rabi	177
7.3.2	Emission spontanée du biexciton : doublet d'Autler-Townes	177
7.3.3	Cascade radiative entre niveaux habillés.	179
7.3.4	Blocage de photons	183
A	Dispositif de micro-photoluminescence	185
B	Dispositif de corrélations de photons	187
C	Publications	189

Introduction

L'électrodynamique quantique est depuis 1990 une source d'inspiration majeure pour les recherches dans les systèmes semi-conducteurs. La discrétisation des niveaux d'énergie [1, 2] due au confinement tridimensionnel dans les boîtes quantiques a fait émerger l'analogie entre un porteur piégé dans une boîte quantique et un électron périphérique dans un atome. On a alors qualifié les boîtes quantiques d'atomes artificiels. Cette analogie, très fructueuse, s'est accompagnée de l'idée de transposer à l'état solide les expériences d'électrodynamique en cavité jusque-là réservées aux atomes [20, 21, 170, 23, 24]. Cette transposition a été rendue possible grâce aux progrès technologiques réalisés dans la fabrication des microcavités semi-conductrices.

L'ensemble des effets d'EDQC observés sur les atomes, visant à modifier l'émission spontanée d'un émetteur par une cavité [25], peuvent être classés en 2 groupes selon l'intensité du couplage lumière-matière et les pertes de la cavité : le régime de couplage faible et le régime de couplage fort. Les pertes de la cavité sont caractérisées par le facteur de qualité de ses modes. La force du couplage dépend des propriétés de l'émetteur et de la cavité caractérisées par les figures de mérite suivantes :

- Le dipôle de l'émetteur, ou une grandeur proportionnelle, sa force d'oscillateur. Ces 2 grandeurs caractérisent la force du couplage de l'émetteur au champ électromagnétique.
- Le volume effectif de la cavité mesure le volume sur lequel est confiné le champ électromagnétique au sein de la cavité.

Dans le régime du couplage faible, les boîtes quantiques ont comblé toutes les attentes concernant l'entrée de l'EDQC dans les systèmes à l'état solide : la modification de l'émission spontanée de l'émetteur par la cavité, ou effet Purcell, est démontré à partir de 1998 [26, 27, 28, 29, 31, 70] ; il est ensuite exploité pour produire une source de photons uniques monomodes en 2001 [70] et indiscernables dès 2002 [33, 34].

L'objet de cette thèse est de présenter la première expérience en régime de couplage fort avec des boîtes quantiques en microcavité. Dans ce régime, les états du système sont des états mixtes lumière-matière purement quantiques. D'un point de vue temporel, le régime de couplage fort se caractérise par la réversibilité de l'émission spontanée.

Ce travail comprend une forte composante expérimentale d'optique quantique dans les semi-conducteurs, une composante technologique pour la fabrication des microcavités, et enfin une composante de modélisation, tant pour la définition préalable du système souhaité que pour l'interprétation des données expérimentales. L'ensemble du travail s'appuie entièrement sur les moyens mis à disposition au LPN : de la croissance des boîtes quantiques et des microcavités en épitaxie par jets

moléculaires, à la micro-fabrication par lithographie optique ou électronique et gravure chimique ou ionique réactive, aux expériences de microphotoluminescence sous excitation pulsée ou continue et résolue en temps.

Le plan de ce mémoire est le suivant :

Le chapitre 1 rappelle les bases théoriques d'interaction lumière-matière nécessaires à la compréhension des phénomènes d'émission spontanée en cavité. La seconde partie du chapitre introduit les systèmes semi-conducteurs. Un état de l'art des cavités semi-conductrices et des boîtes quantiques au début de cette thèse permet de choisir le système semi-conducteur le plus prometteur pour l'observation du régime de couplage fort, c'est-à-dire le système dans lequel les pertes de la cavité sont minimales (donc le facteur de qualité maximal) et où l'intensité du couplage lumière-matière est renforcée par une grande force d'oscillateur de l'émetteur et un faible volume effectif modal. Le système retenu est constitué de boîtes quantiques de GaAs insérées dans un microdisque.

Après une brève présentation et caractérisation optique des échantillons dans le chapitre 2, nous consacrons le chapitre 3 à l'étude des forces d'oscillateur des émetteurs, les excitons localisés dans des boîtes quantiques d'arséniure de gallium. Afin de connaître leur force d'oscillateur et donc leur potentiel pour l'observation du couplage fort, nous étudions leur dynamique d'émission au moyen d'expériences de micro-photoluminescence résolue en temps.

Le chapitre 4 est consacré à l'étude des largeurs de raie des excitons confinés. Ce faisant, nous établissons quelques-unes des limites de la comparaison des boîtes quantiques aux atomes artificiels. En particulier, l'environnement joue un rôle central dans la perte de cohérence de l'émetteur. Les deux interactions prédominantes sont, l'une avec le réseau cristallin, plus précisément les phonons acoustiques, l'autre avec l'environnement électrostatique.

Les propriétés des microdisques sont étudiées dans le chapitre 5. Une présentation théorique des modes qui s'établissent dans ces microcavités, les modes de galerie, permet de comprendre leur intérêt en terme de facteur de qualité et de volume effectif. Dans ce chapitre, nous exposons la technologie utilisée pour leur réalisation ainsi que les caractérisations optiques qui permettent de connaître leur facteur de qualité. Nous décrivons également un nouveau type de cavité, les microdisques sur piédestal d'AlOx, réalisés pour la première fois au LPN.

Le chapitre 6 est le point de convergence de l'ensemble des chapitres précédents. Après avoir détaillé chacun des paramètres dans les chapitres 3 à 5, nous recensons l'ensemble des conditions d'obtention du couplage fort. Nous exposons ensuite la première démonstration expérimentale du régime de couplage fort pour une boîte quantique unique de GaAs en microdisque. Nous discutons également des observations du couplage fort dans les différents systèmes semi-conducteurs 0D.

Nous concluons ce manuscrit en donnant quelques pistes pour les travaux futurs sur ce sujet.

Chapitre 1

Electrodynamique quantique en cavité et boîtes quantiques

Dans ce chapitre, nous rappelons les bases théoriques d'interaction lumière-matière nécessaires à la compréhension des phénomènes d'émission spontanée en cavité (partie 1.1). Nous adoptons le traitement tout quantique [38], dans lequel l'émission spontanée est naturellement incluse. Nous en déduisons les paramètres-clés de l'émetteur et de la cavité pour observer des effets d'électrodynamique quantique en cavité (EDQC). Dès lors, nous nous concentrons sur les systèmes semi-conducteurs. Dans la partie 1.2, nous présentons brièvement les microcavités semi-conductrices confinant la lumière dans les 3 directions (les cavités 0D) et leur intérêt par rapport à ces paramètres. Nous introduisons l'émetteur dans la partie 1.3 ; il s'agit d'un exciton localisé par une boîte quantique d'arséniure de gallium (GaAs). Nous définissons la notion d'exciton et celle de force d'oscillateur, propriété qui caractérise la force du couplage de l'émetteur au champ électromagnétique. Enfin, dans la partie 1.4, nous dressons l'état de l'art des effets d'EDQC observés avec les boîtes quantiques en microcavité au début de cette thèse. Après la description des principaux effets déjà observés en régime de couplage faible, nous situons l'objectif de cette thèse, à savoir le passage au régime de couplage fort, par rapport à l'état de l'art en 2003.

1.1 Emission spontanée en cavité

1.1.1 Système de Jaynes-Cummings

Considérons un émetteur dans une cavité aux parois strictement réfléchissantes. A cause des conditions aux limites imposées par la cavité, le champ à l'intérieur de celle-ci ne peut exister que dans une superposition de modes propres aux fréquences parfaitement déterminées. Parmi tous ces modes, on suppose qu'un seul a une fréquence-propre proche de la transition reliant le niveau fondamental $|g\rangle$ à son niveau excité $|e\rangle$.

Pour étudier l'évolution du système, on isole ce mode, défini par sa pulsation ω_l et sa polarisation. Dans le cadre du traitement entièrement quantique du couplage lumière-matière par l'interaction dipolaire électrique, l'émetteur et le champ sont quantifiés :

- On considère l'émetteur comme un système à 2 niveaux, caractérisé par sa fréquence de Bohr $\omega_{em} = \omega_e - \omega_g$.

– Le champ électrique quantifié s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}) = i \sum_l \sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{2\varepsilon_0\varepsilon_r}} (a_l \vec{\alpha}_l(\vec{r}) - a_l^\dagger \vec{\alpha}_l^*(\vec{r})) \quad (1.1)$$

a_l et a_l^\dagger désignent les opérateurs de destruction et de création d'un photon dans le mode l , ε_0 et ε_r les permittivités du vide et du milieu, et $\vec{\alpha}_l(\vec{r})$ la fonction spatiale normalisée du mode. Cette fonction décrit la polarisation du champ en \vec{r} et son amplitude relative. Nous faisons par la suite l'approximation dite des grandes longueurs d'onde, dans laquelle le champ est considéré constant sur l'étendue de l'émetteur. L'expression du champ en \vec{r} donnée par l'équation 1.1, est alors remplacée par la valeur du champ évaluée à la position de l'émetteur.

Le volume du mode, appelé aussi volume effectif de la cavité, est défini par :

$$V = \int \int \int |\vec{\alpha}_l(\vec{r})|^2 d^3 \vec{r} \quad (1.2)$$

Ce modèle simplifié d'un système à 2 niveaux interagissant avec un mode unique du champ électromagnétique s'appelle système de Jaynes-Cummings.

1.1.2 Hamiltonien de Jaynes-Cummings

L'espace des états décrivant le système est constitué par le produit tensoriel des états de l'émetteur à 2 niveaux $\{|g\rangle, |e\rangle\}$ et l'espace d'un mode unique du champ électro-magnétique dont une base est celle des états nombres $\{|n\rangle, n \in \mathbb{N}\}$. Une base de l'espace produit est donc : $\{|i, n\rangle, i = e \text{ ou } g \text{ et } n = 0, 1, \dots\}$. L'hamiltonien total, dans la jauge de Göppert-Mayer, en négligeant les couplages non-résonants, est la somme de l'hamiltonien de l'émetteur, de l'hamiltonien du champ électromagnétique et de l'hamiltonien d'interaction dipolaire-électrique :

$H_{JC} = H_{em} + H_{rayonnement} + H_{int}$ avec :

$$H_{em} = \hbar\omega_e |e\rangle\langle e| \otimes Id_l$$

$$H_{rayonnement} = \hbar\omega_l a^\dagger a \otimes Id_{em}$$

$$H_{int} = -i \frac{\hbar\Omega_v}{2} (|e\rangle\langle g| a - |g\rangle\langle e| a^\dagger)$$

où le zéro d'énergie est pris en $\hbar\omega_g + \frac{1}{2}\hbar\omega_l$. Id_{em} et Id_l désignent les opérateurs identités agissant respectivement sur l'espace de l'émetteur et du champ. La constante de couplage de l'interaction est $\frac{\hbar\Omega_v}{2} = |\langle \vec{D} \cdot \vec{E} \rangle|$ où \vec{D} est l'opérateur dipôle. Par la suite, nous utiliserons la force d'oscillateur de l'émetteur pour caractériser la force de couplage de l'émetteur au champ électromagnétique plutôt que le dipôle. Ces 2 grandeurs sont liées par la relation : $f = \frac{2m\omega_{em}}{e^2\hbar} d^2$, où m désigne la masse de l'électron libre. La constante de couplage de l'interaction dipolaire électrique, vaut donc, en fonction de f :

$$\boxed{\hbar \frac{\Omega_v}{2} = \hbar \sqrt{\frac{1}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r} \frac{\pi e^2 f}{mV}}} \quad (1.3)$$

Nous retiendrons que la force du couplage est proportionnelle à $\sqrt{\frac{f}{V}}$.

1.1.3 Energies-propres et états-propres

En l'absence de couplage, les états-propres du système sont les états découplés $|i, n\rangle$. Ils forment une base de l'espace découplé. Calculons les éléments de matrice :

$$\langle i, n | H_{int} | i', n' \rangle = \frac{\hbar\Omega_v}{2} \{ \langle i | g \rangle \langle e | i' \rangle + \langle i | e \rangle \langle g | i' \rangle \} \langle n | a + a^\dagger | n' \rangle \quad (1.4)$$

Ils sont non-nuls si $i = g$ et $i' = e$ ou si $i' = g$ avec $n' = n \pm 1$. Cet hamiltonien n'a pas d'éléments de matrice diagonaux. Il connecte les états $|g, n\rangle$ et $|e, n-1\rangle$ avec un élément de matrice :

$$\langle g, n | H_{int} | e, n-1 \rangle = \frac{1}{2} \hbar \Omega_v \sqrt{n}$$

On obtient le système suivant :

$$\begin{cases} H_{JC} |g, n\rangle &= n \hbar \omega_l |g, n\rangle - i \frac{\hbar \Omega_v}{2} \sqrt{n} |e, n-1\rangle \\ H_{JC} |e, n-1\rangle &= (\hbar \omega_e + (n-1) \hbar \omega_l) |e, n-1\rangle + \frac{\hbar \Omega_v}{2} \sqrt{n} |g, n\rangle \end{cases}$$

On constate que la multiplicité $M_n = \{|g, n\rangle, |e, n-1\rangle\}$ est fermée par cet hamiltonien. Cherchons les valeurs-propres et vecteurs-propres :

Pour $n = 0$, $H_{JC} |g, 0\rangle = 0$. Cet état isolé est donc un état-propre avec pour énergie-propre 0.

Pour $n \neq 0$, la diagonalisation du système (2×2) donne pour énergies propres E_n et pour états-propres $|\psi_{\pm n}\rangle$ [54] :

$$\begin{cases} E_{\pm n} &= \hbar(n\omega_l - \frac{\delta}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{n\Omega_v^2 + \delta^2}) \\ |\psi_{+n}\rangle &= \cos \theta_n |g, n\rangle + i \sin \theta_n |e, n-1\rangle \\ |\psi_{-n}\rangle &= i \sin \theta_n |g, n\rangle + \cos \theta_n |e, n-1\rangle \end{cases}$$

où le désaccord δ est défini par $\delta = \omega_l - \omega_e$ et le paramètre θ par : $\tan 2\theta_n = \frac{\sqrt{n\Omega_v}}{\delta}$

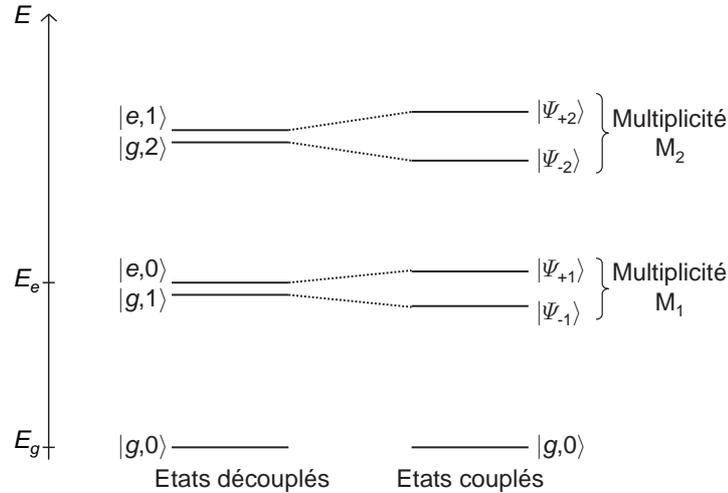


FIG. 1.1 – Niveaux d'énergie du système émetteur-champ en l'absence (à gauche) et en présence (à droite) de couplage dipolaire-électrique.

Les états $|\psi_{+n}\rangle$ et $|\psi_{-n}\rangle$ sont dits intriqués de l'émetteur et du rayonnement car il n'est pas possible de les écrire sous la forme d'un produit tensoriel d'états $|i\rangle \otimes |n\rangle$, avec $i = e$ ou g . C. Cohen-Tannoudji a baptisés ces états "états de l'atome habillés par le champ". On parle elliptiquement d'états habillés.

Pour $n = 1$, cas particulier qui sera notre situation expérimentale, les énergies propres sont :

$$E_{\pm 1} = \hbar \frac{\omega_l + \omega_e}{2} - \hbar \frac{\delta}{2} \pm \frac{\hbar}{2} \sqrt{\Omega_v^2 + \delta^2} \quad (1.5)$$

Les niveaux d'énergie E_{+0} et $E_{\pm 1}$ sont représentés en fonction du désaccord sur la figure 6.1. Il s'agit de 2 branches d'hyperboles. On observe un croisement évité autour de $\delta = 0$: l'effet du

couplage est de lever la dégénérescence de $|g, 1\rangle$ et $|e, 0\rangle$. L'écart entre les niveaux $|\psi_{\pm 1}\rangle$ est appelé dédoublement de Rabi et vaut : $\hbar\Omega_R = \hbar\sqrt{\Omega_v^2 + \delta^2}$.

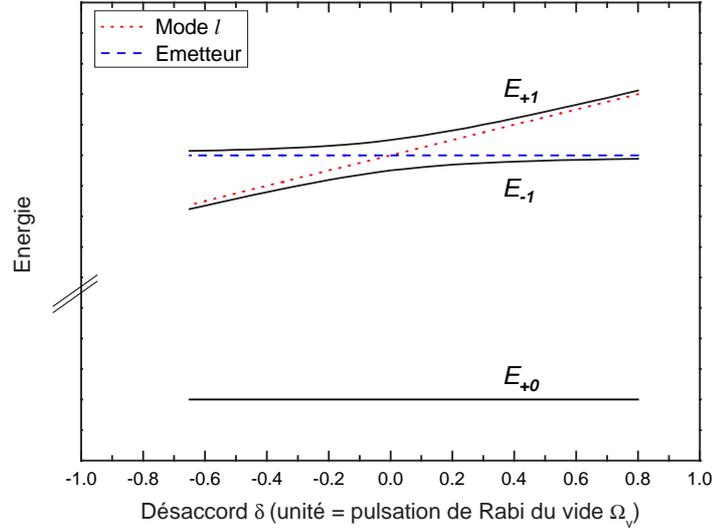


FIG. 1.2 – Traits pointillés : niveaux d'énergie de la transition de l'émetteur et du mode l du champ électromagnétique en l'absence d'interaction. Traits pleins : Allure des premiers niveaux d'énergie du système couplé émetteur-champ en fonction du désaccord. Du fait de l'interaction, on observe un croisement évité autour de la résonance (désaccord nul). L'axe vertical brisé signifie que l'écart entre les multiplicités est très grand devant la levée de dégénérescence à la résonance.

A désaccord nul, c'est-à-dire à la résonance ($\theta = \frac{\pi}{4}$), les états-propres sont donnés par :

$$\begin{cases} |\psi_{+1}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|g, 1\rangle + i|e, 0\rangle) \\ |\psi_{-1}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(i|g, 1\rangle + |e, 0\rangle) \end{cases}$$

En s'éloignant de la résonance, δ tend vers $\pm\infty$; les états-propres tendent vers les états de la base découplée ; le système se désintègre.

1.1.4 Emission spontanée de l'émetteur dans la cavité

A la résonance Supposons le mode de cavité à résonance avec la transition fondamental/excité de l'émetteur. Supposons qu'à $t = 0$, le système soit dans l'état "émetteur excité dans la cavité vide" $|e, 0\rangle$. Cet état n'est pas un état-propre de l'hamiltonien de Jaynes-Cummings indépendant du temps ; ce n'est donc pas un état stationnaire. Dans la base des états-propres, il se décompose en une combinaison linéaire des états-propres $|\psi_{+1}\rangle$ et $|\psi_{-1}\rangle$:

$$|\psi(0)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\psi_{+1}\rangle + |\psi_{-1}\rangle) \quad (1.6)$$

Il évolue donc selon :

$$|\psi(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(\exp(-\frac{iE_{+1}t}{\hbar})|\psi_{+1}\rangle + \exp(-\frac{iE_{-1}t}{\hbar})|\psi_{-1}\rangle) \quad (1.7)$$

$$= \exp(-i\omega_e t)(\cos \frac{\Omega_R t}{2}|e, 0\rangle - i \sin(\frac{\Omega_R t}{2})|g, 1\rangle) \quad (1.8)$$

La probabilité P_b de trouver l'émetteur dans l'état excité évolue en fonction du temps selon :

$$P_b(t) = \sum_n |\langle e, n | \psi(t) \rangle|^2 = |\langle e, 0 | \psi(t) \rangle|^2 = \cos^2\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \quad (1.9)$$

L'évolution spontanée de l'émetteur dans la cavité est donc très différente de l'émission spontanée dans le vide :

- Dans le vide, l'état excité est couplé à un continuum d'états finals ; il en résulte une évolution exponentielle décroissante.
- En cavité, le couplage entre états discrets rend l'émission spontanée *réversible*. L'émetteur excité se désexcite en émettant un photon dans le mode. En l'absence de pertes de la cavité, le photon peut ensuite être ré-absorbé par l'émetteur qui se trouve alors de nouveau dans l'état excité, la cavité étant à nouveau vide, etc. Ces cycles s'appellent oscillations de Rabi à un photon.

Hors résonance De façon identique, le calcul hors résonance donne la probabilité $P_b(t)$ de trouver l'émetteur dans l'état excité :

$$P_b(t) = 1 - \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R^2 + \delta^2} \sin^2\left(\sqrt{\delta^2 + \Omega_R^2} \frac{t}{2}\right) \quad (1.10)$$

Cette probabilité reste proche de 1 dès que $\delta \gg \Omega_R$. Cela signifie que l'émetteur reste dans l'état excité même aux temps longs. Ce comportement est très différent de celui qu'aurait l'émetteur dans le vide. L'émission spontanée est inhibée dans la cavité car les photons susceptibles d'être émis spontanément ne forment plus un continuum autour de la transition de l'émetteur.

En résumé, l'émission spontanée n'est pas une propriété intrinsèque de l'émetteur, mais plutôt de l'émetteur dans son environnement électromagnétique.

1.1.5 Introduction de la relaxation

Dans les situations expérimentales réelles, les cavités ne sont pas parfaitement réfléchissantes et les niveaux excités des émetteurs ne sont pas parfaitement stables. Pour prendre en compte la relaxation, il faut décrire le système par le formalisme de la matrice densité en intégrant les largeurs de raie $\hbar\gamma_e$ de l'état excité et $\hbar\gamma_l$ du mode. Chaque mode de cavité est caractérisé par un facteur de qualité Q et une largeur spectrale $\hbar\gamma_l$ reliés par : $Q = \frac{\omega_l}{\gamma_l}$. L'équation-maîtresse décrivant l'évolution de la matrice densité σ est :

$$\frac{d\sigma}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [H_{JC}, \sigma] - \frac{\gamma_e}{2} (\sigma |e\rangle\langle e| + |e\rangle\langle e| \sigma) + \gamma_e |g\rangle\langle e| \sigma |e\rangle\langle g| - \frac{\gamma_l}{2} (\sigma a^+ a + a^+ a \sigma) + \gamma_l a \sigma a^+ \quad (1.11)$$

Supposons de nouveau qu'à $t = 0$, le système soit dans l'état "émetteur excité dans la cavité vide" $|e, 0\rangle$. Cet état est toujours couplé avec $|g, 1\rangle$, mais tous 2 sont également couplés à $|g, 0\rangle$:

- $|e, 0\rangle$ est couplé à $|g, 0\rangle$ par émission spontanée (qui ne rajoute pas de photon dans le mode considéré de la cavité).
- $|g, 1\rangle$ est couplé à $|g, 0\rangle$ par les pertes de la cavité.

On a un système à 3 niveaux (et donc une matrice densité (3×3)) schématisé sur la figure 1.3.

La dérivation de l'équation-maîtresse utilisant la matrice-densité (3×3) et du spectre de luminescence peuvent être trouvés dans la littérature [55] et ne seront pas détaillés ici. Le calcul

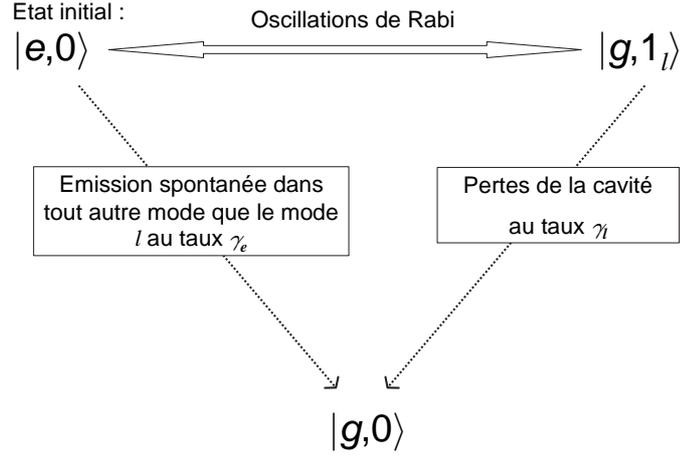


FIG. 1.3 – Représentation schématique du système à trois niveaux et du rôle de la relaxation.

est analytique dans la limite des faibles excitations. Dans cette limite, le spectre de luminescence du système, dans le cas résonant, est de la forme [56] :

$$S(\omega) \propto \left(\frac{\Omega_+ - \omega_e + i\frac{\gamma_l}{2}}{\omega - \Omega_+} - \frac{\Omega_- - \omega_e + i\frac{\gamma_l}{2}}{\omega - \Omega_-} \right)^2 \quad (1.12)$$

où

$$\Omega_{\pm} = \omega_e - \frac{i}{4}(\gamma_e + \gamma_l) \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Omega_v^2 - \left(\frac{\gamma_e - \gamma_l}{2}\right)^2} \quad (1.13)$$

Le signe du radical de la racine permet de distinguer 2 régimes :

Le régime de couplage fort Si le radical est négatif, c'est-à-dire si $\Omega_v > \frac{|\gamma_l - \gamma_e|}{2}$, les 2 solutions sont :

$$\Omega_{\pm} = -i\omega_e - \frac{|\gamma_l + \gamma_e|}{4} \pm \frac{i}{2} \sqrt{\Omega_v^2 - \left(\frac{\gamma_l - \gamma_e}{2}\right)^2} \quad (1.14)$$

Il y a 2 fréquences d'oscillation différentes et une même fréquence de relaxation : cela correspond à la moitié droite de la figure 1.4.

Le spectre d'émission spontanée est constitué d'un doublet séparé par le dédoublement de Rabi $\hbar\Omega_R = \hbar\sqrt{\Omega_v^2 - \left(\frac{\gamma_l - \gamma_e}{2}\right)^2}$ avec une même largeur spectrale de $\hbar\frac{\gamma_l + \gamma_e}{2}$.

Le régime de couplage faible Si maintenant le radical est positif, c'est-à-dire si $\frac{|\gamma_l - \gamma_e|}{2} > \Omega_v$, les 2 solutions sont :

$$\Omega_{\pm} = -i\omega_e - \frac{\gamma_l + \gamma_e}{4} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{\gamma_e - \gamma_l}{2}\right)^2 - \Omega_v^2} \quad (1.15)$$

Les 2 oscillations sont en phase (il y a une seule fréquence d'oscillation) mais avec 2 fréquences de relaxation différentes. Cela correspond à la moitié gauche de la figure 1.4.

Considérons le cas particulier du couplage dit très faible, où $\frac{|\gamma_l - \gamma_e|}{2} \gg \Omega_v$, c'est-à-dire qu'on s'intéresse à la région des courbes vers les faibles valeurs de Ω_v avec $\gamma_l \gg \gamma_e$. Un développement

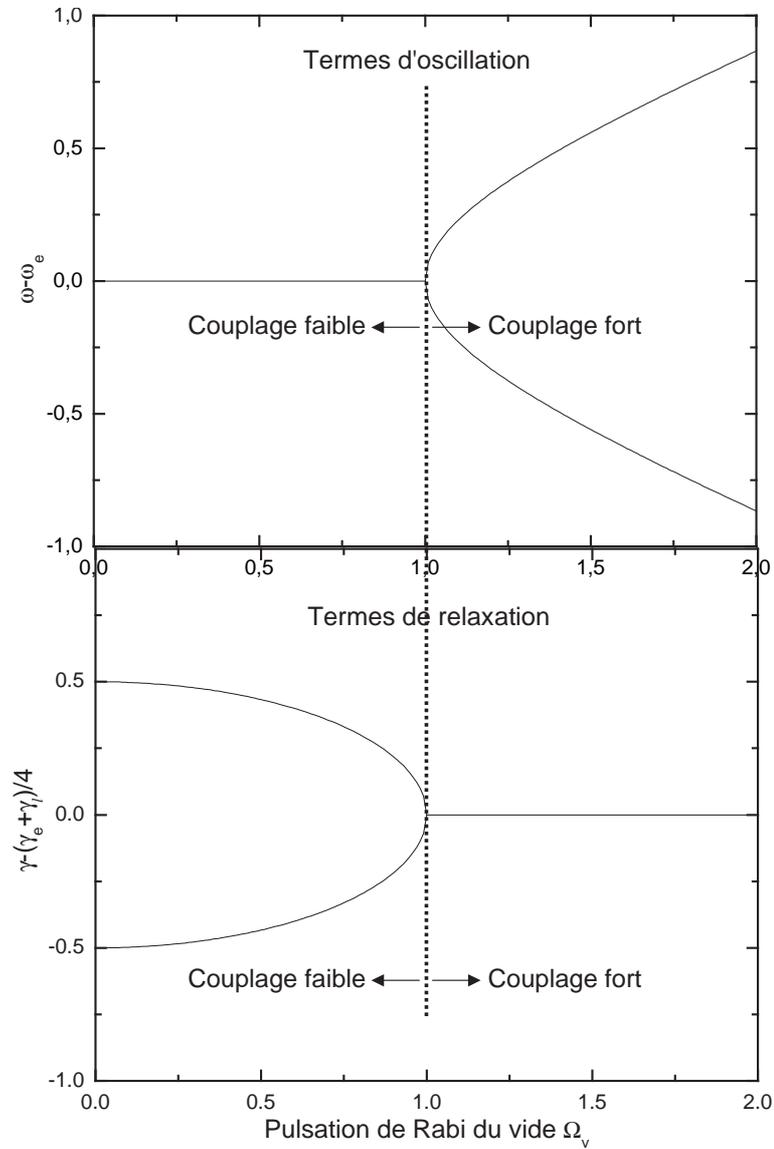


FIG. 1.4 – Représentation graphique des parties imaginaires (termes d'oscillation) et réelles (termes de relaxation) en fonction de la pulsation de Rabi du vide. Les grandeurs sont exprimées en prenant pour unité $(\frac{|\gamma_e - \gamma_l|}{2})$. Le passage couplage faible-couplage fort est matérialisé par les pointillés. En couplage faible (partie gauche), les 2 états couplés ont une pulsation d'oscillation identique, et 2 pulsations de relaxation différentes. En couplage fort (partie droite), les 2 états couplés ont, au contraire, 2 pulsations d'oscillation différentes et une même pulsation de relaxation.

limité des solutions dans la limite $\gamma_l \gg \gamma_e$ donne dans cette approximation les 2 solutions suivantes :

$$\begin{cases} \Omega_l &= \omega - i\frac{\gamma_l}{2} \\ \Omega_e &= \omega - i\left(\frac{\gamma_e}{2} + \frac{\Omega_v^2}{2|\gamma_l|}\right) \end{cases}$$

Intéressons-nous aux parties imaginaires des solutions, qui correspondent à la relaxation. $\frac{\gamma_l}{2}$ est la pulsation de relaxation du mode l du champ électromagnétique, $\Gamma_e = \left(\frac{\gamma_e}{2} + \frac{\Omega_v^2}{2|\gamma_l|}\right)$ est la pulsation de relaxation de l'émetteur dans la cavité. Cela montre que la présence de la cavité résonante modifie le taux de désexcitation de l'émetteur, qui est augmenté d'un terme $\frac{\Omega_v^2}{\gamma_l} = \frac{\Omega_v^2 Q}{\omega_l}$.

Dans le vide, le taux d'émission spontanée est donné par :

$$\gamma_{vide} = \frac{4}{3} \frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{4\pi\varepsilon_0} \frac{d^2\omega^3}{\hbar c^3} \quad (1.16)$$

Or

$$\Omega_v^2 = 4\left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r} \frac{\pi e^2 f}{mV}\right) \text{ et } f = \frac{2m\omega_e d^2}{e^2\hbar} \quad (1.17)$$

Ces relations permettent d'exprimer le rapport des taux d'émission spontanée dans le mode l et du taux d'émission spontanée dans le vide sous la forme :

$$\frac{\Gamma_e}{\gamma_{vide}} = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \frac{Q}{V} \quad (1.18)$$

connu sous le nom de facteur de Purcell [39].

Ce résultat s'obtient également par la théorie des perturbations [38] : si la largeur de la cavité domine γ_e et Ω_v , le mode de cavité ne peut plus être considéré comme un mode unique du champ mais comme un continuum de largeur γ_l . La règle d'or de Fermi permet alors de calculer la probabilité de transition avec une densité d'états $\rho(E) = \frac{1}{\hbar\gamma_l}$. On trouve le même résultat par cette méthode.

Bilan : passage du couplage faible au couplage fort Le passage du régime de couplage faible au régime de couplage fort a lieu, d'après l'équation 1.13 pour $\Omega_v = \frac{|\gamma_l - \gamma_e|}{2}$. Ce résultat est valable si le déphasage de l'émetteur est uniquement dû à un couplage à un réservoir. Dans le cas général (par exemple l'interaction coulombienne), le déphasage subi par l'émetteur n'est pas forcément de ce type. Dans les expériences résolues spectralement, le régime de couplage fort (resp. faible) se manifeste par l'observation de 2 (resp. une seule) raie(s) à la résonance. Par la suite, nous poserons plus simplement : $\Omega_v > \frac{|\gamma_l + \gamma_e|}{2}$ comme condition suffisante. Cette condition signifie que le dédoublement de Rabi doit être supérieur à la largeur moyenne des raies d'émission. **Or, le dédoublement de Rabi est proportionnel à $\sqrt{\frac{f}{V}}$, et γ_l à Q^{-1} . Pour observer le couplage fort, nous devons donc maximiser $Q\sqrt{\frac{f}{V}}$. Dans toute la suite, nous envisagerons les différents systèmes semi-conducteurs avec cet objectif : maximiser Q et f , et minimiser V .**

Le sens physique de chacun de ces paramètres est le suivant :

- Q représente le stockage de l'énergie électromagnétique dans la cavité. L'énergie électromagnétique décroît en un temps caractéristique $\frac{2\pi}{\gamma_l} = \frac{2\pi Q}{\omega_l}$. Pour conserver le photon le plus longtemps possible dans la cavité, il faut donc maximiser le facteur de qualité Q .
- f représente le couplage de l'émetteur au champ électromagnétique, et notamment sa capacité à recycler le photon avant qu'il ne s'échappe définitivement de la cavité. D'où l'intérêt de maximiser la force d'oscillateur.

- Enfin, V représente l'inverse du confinement du champ électromagnétique dans la cavité. Plus le confinement est grand, plus le champ local ressenti par l'émetteur sera fort. Pour renforcer l'interaction dipolaire électrique, il faut donc minimiser V .

Dans les 2 prochaines sections, nous examinons la potentialité des différents systèmes semi-conducteurs pour l'interaction lumière-matière en régime de couplage fort. Les performances des différentes microcavités semi-conductrices en terme de facteur de qualité et volume modal sont comparées dans la partie 1.2.

1.2 Bref aperçu des cavités semi-conductrices 0D

Dans le domaine des fréquences optiques, il n'existe pas de miroir métallique sans perte. Le confinement tridimensionnel du champ électromagnétique à l'échelle de la longueur d'onde est obtenu dans les microcavités semi-conductrices par [37] :

- la réflexion totale interne ;
- la réflexion de Bragg.

Les cavités semi-conductrices 0D (c'est-à-dire confinant le champ dans les 3 directions) présentent un spectre discret de modes confinés dans les 3 directions. Cependant, le confinement n'étant pas parfait, ce spectre se superpose au continuum des modes de l'espace libre. Un émetteur placé dans cette cavité répartira donc son émission entre les modes résonants et les modes non-résonants ou modes dits de fuite, c'est-à-dire tels que leur direction de propagation ne permet pas le guidage. Dans cette partie, nous donnons un aperçu des principales cavités 0D et leurs performances en terme de facteur de qualité Q et volume modal V .

1.2.1 Micropiliers

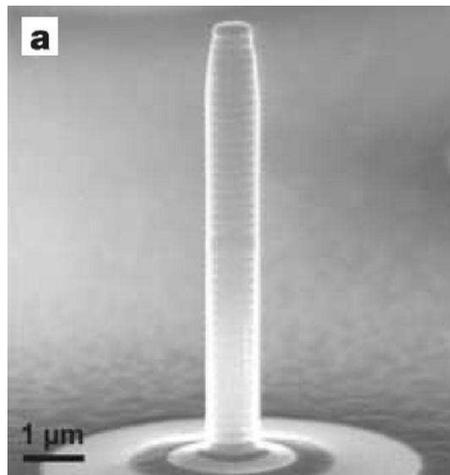


FIG. 1.5 – Image obtenue au microscope électronique à balayage d'un micropilier de $0.8 \mu\text{m}$ de diamètre [41].

Les micropiliers sont essentiellement des guides d'onde cylindriques délimités à chaque extrémité par un miroir de Bragg. Fabriqués par gravure d'une microcavité planaire, ils combinent le guidage par l'axe du pilier et la réflexion par les miroirs de Bragg pour obtenir un confinement tridimensionnel de la lumière [42]. La principale limite des micropiliers est la forte réduction du facteur de qualité avec la diminution de leur diamètre. Le champ électromagnétique devient sensible aux

défauts de gravure des flancs [40]. L'état de l'art en 2003 correspond à $Q=2000$ pour $V_{eff} = 5(\frac{\lambda}{n})^3$ [26].

1.2.2 Cristaux photoniques

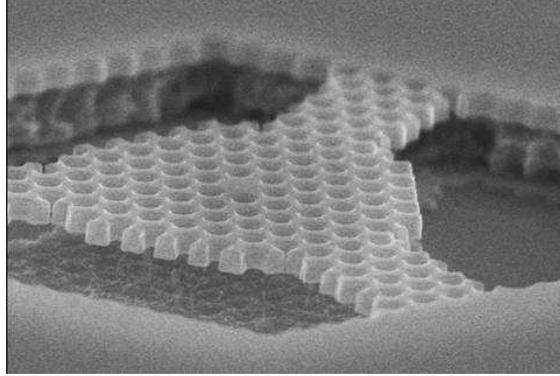


FIG. 1.6 – Cavité à cristaux photoniques formée d'un trou manquant (au centre de l'image) dans un cristal photonique parfait. Le cristal photonique est gravé dans une membrane GaAs de 180 nm d'épaisseur [44].

Les cavités à cristaux photoniques sont des structures périodiques de trous gravés dans le semiconducteur qui présentent des bandes interdites pour la propagation de la lumière. La période de ces structures est de l'ordre de la longueur d'onde du photon. En rompant la périodicité (par exemple en omettant un trou), le champ est confiné sur les défauts de périodicité, et donc sur un faible volume.

Les cristaux photoniques sur membrane allient le guidage dans le semi-conducteur et le confinement latéral par le cristal photonique [43]. Des cristaux bidimensionnels sur membrane semiconductrice suspendue dans l'air ou sur une couche d'oxyde ont permis la démonstration de modes ayant un volume effectif de volume $V_{eff} = 0.4(\frac{\lambda}{n})^3$, avec un facteur de qualité de 2800 [45] en 2001. Ce qu'il est important de noter, c'est que ce facteur de qualité est limité non pas intrinsèquement mais à la fois par le dessin de la structure et par l'état de l'art de la technologie.

1.2.3 Microdisques

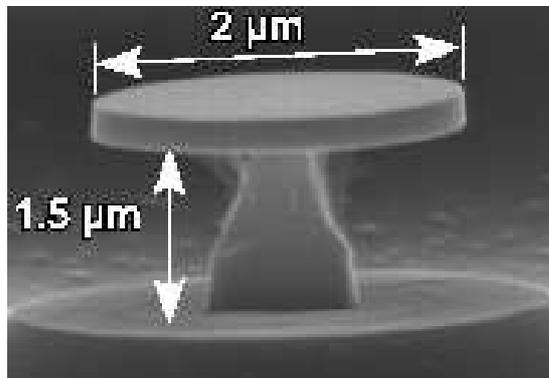


FIG. 1.7 – Image obtenue au microscope électronique à balayage d'un microdisque de 2 μm de diamètre [46].

Les microdisques, dans lesquels des modes dits de galerie s'établissent par réflexion totale interne, seront étudiés en détail au chapitre 5. Pour ce bref aperçu des cavités semi-conductrices

0D, retenons que le principal avantage des microdisques sur les micropiliers est d'obtenir un confinement de la lumière plus grand, avec de meilleurs facteurs de qualité : un microdisque de $2\ \mu\text{m}$ de diamètre confine le champ électromagnétique dans un volume effectif comparable à un micropilier de $1\ \mu\text{m}$ de diamètre ($V = 6(\frac{\lambda}{n})^3$); les facteurs de qualité des modes de galerie sont 6 fois plus grands ($Q = 12000$) [48] que ceux des modes des micropiliers.

Le tableau suivant résume les figures de mérite Q, V et $\frac{Q}{\sqrt{V}}$ des 3 types de cavité que nous venons de décrire. Ce tableau montre qu'à l'état de l'art des cavités en 2003, le microdisque est la cavité la plus prometteuse pour le renforcement de l'interaction lumière-matière en vue d'atteindre le couplage fort. C'est en effet le système pour lequel le paramètre est $\frac{Q}{\sqrt{V}}$ est maximal.

Cavités GaAs/AlGaAs		Q	$V((\frac{\lambda}{n})^3)$	$\frac{Q}{\sqrt{V}}$	Références
Micropiliers	2003	$2\ 10^3$	5	900	[26]
Microdisques	2003	$1.2\ 10^4$	6	5000	[48]
Cristaux photoniques	2003	$2.8\ 10^3$	0.4	4400	[45]

1.3 Emetteur : exciton d'une boîte quantique unique de GaAs

Une caractéristique des solides semi-conducteurs est leur possible miniaturisation jusqu'à l'échelle nanométrique. Le confinement à l'échelle nanométrique conduit alors à la discrétisation des états électroniques, qui présentent des raies d'émission très fines de largeur inférieure à kT [3]. C'est l'origine de la terminologie "boîtes quantiques" et de leur comparaison à des atomes artificiels. Les avantages communs aux différentes boîtes quantiques par rapport aux atomes pour les expériences d'EDQC sont les suivants [37] :

- Le dipôle de la transition fondamentale est bien plus grand pour les excitons des boîtes quantiques que pour les atomes. Des mesures d'absorption sur des boîtes quantiques d'InAs [135] montrent que le dipôle est de l'ordre de 9.10^{-19}Cm , ce qui est 10 fois plus grand que les valeurs typiques des atomes émettant dans la même gamme d'énergie. La force d'oscillateur des excitons des boîtes quantiques à fluctuations d'interface, comme nous le verrons par la suite, peut dépasser celle des atomes de 2 ordres de grandeur [35, 36].
- Leur longueur d'onde d'émission dépend de leur taille. Ce qui pourrait être un inconvénient peut être tourné en avantage. La taille des boîtes quantiques ne pouvant être contrôlée avec une précision infinie, au lieu de placer une seule boîte quantique dans une cavité, en un endroit précis, ce qui est très compliqué, l'approche consiste à en mettre quelques centaines. La distribution statistique des tailles entraîne une distribution statistique des longueurs d'onde d'émission des transitions excitoniques, ce qui permet d'obtenir une boîte quantique à une longueur d'onde proche de la longueur d'onde désirée. Un accord spectral fin est encore possible pour obtenir l'exacte résonance, au moyen de la température, comme nous le verrons au chapitre 6.
- Enfin, contrairement aux atomes, les boîtes quantiques peuvent être excitées de façon non-résonante à haute énergie. La présence des phonons assure la relaxation et la capture dans la boîte quantique des paires électrons-trous photocréées.

Les boîtes quantiques auto-assemblées formées dans les semi-conducteurs II-VI ou les boîtes quantiques de GaN pourraient être intéressantes en terme de force d'oscillateur. Malheureusement, la

technologie des cavités 0D dans ces matériaux est loin d'être aussi avancée que dans les III-V. Nous avons retenu, non pas les boîtes quantiques d'InAs qui sont les boîtes quantiques les plus étudiées dans les semi-conducteurs III-V, mais les boîtes quantiques naturelles de GaAs, formées par les fluctuations d'épaisseur d'un puits quantique de GaAs étroit, beaucoup plus intéressantes, comme nous allons le voir, en terme de force d'oscillateur. Le paragraphe suivant est consacré à la description des excitons localisés par ces boîtes quantiques dites naturelles. Après avoir défini la notion d'exciton, nous nous intéressons à la force de couplage de l'exciton au champ électromagnétique, caractérisée par la force d'oscillateur f .

1.3.1 Notion d'exciton

La démarche que nous adoptons est la suivante : pour commencer, nous rappelons comment décrire simplement les excitons dans le GaAs massif, puis dans un puits quantique de GaAs, et enfin dans une boîte quantique naturelle de GaAs. Cette description des excitons s'appuie sur l'ouvrage de référence de G. Bastard [57].

Exciton du GaAs massif Commençons par étudier le cas simple des états excitoniques du GaAs massif. L'émission et l'absorption du rayonnement dans un semi-conducteur sont régies par la promotion des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. Ces bandes sont séparées en énergie par une bande interdite ε_g (gap en anglais). Or les spectres d'absorption [58] ou d'émission montrent l'existence de pics étroits et intenses d'énergie inférieure à la bande interdite ε_g . En effet, l'interaction coulombienne attractive électron-trou donne lieu à des états liés dans la bande interdite, appelés excitons [59], semblables à des états de l'atome d'hydrogène. Le formalisme utilisé pour décrire les excitons est calqué sur celui de l'atome d'hydrogène. Considérons la bande de conduction, dont la relation de dispersion est donnée par :

$$\varepsilon_c(\mathbf{k}) = \varepsilon_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c^*} \quad (1.19)$$

Elle est séparée par l'énergie ε_g de la bande de valence dont la relation de dispersion est :

$$\varepsilon_v(\mathbf{k}) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_v^*} \quad (1.20)$$

m_c^* et m_v^* désignent respectivement les masses effectives de l'électron dans la bande de conduction et dans la bande valence. L'état fondamental du semi-conducteur, pris pour origine des énergies est celui où N électrons occupent les N places disponibles de la bande de valence, et où tous les états de la bande de conduction sont vides. Une excitation du cristal correspond à la promotion d'un électron de vecteur d'onde \mathbf{k}_v de la bande de valence dans la bande de conduction avec un vecteur d'onde \mathbf{k}_c , laissant une place vacante dans la bande de valence. Cette situation peut être vue comme la création simultanée d'un électron avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_c$ et d'un trou avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_h = -\mathbf{k}_v$. Ce trou est caractérisée par une charge positive $+e$ et par une masse $+m_v$ [60]. L'état excité de plus basse énergie ($\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v = \mathbf{0}$) aurait pour énergie ε_g en l'absence d'interaction coulombienne. Avec la prise en compte de l'interaction coulombienne, l'énergie de l'état excité du cristal devient inférieure à la bande interdite. L'énergie de liaison finie de cette état s'appelle le Rydberg de l'exciton Ry^{ex} . Comme cette paire électron-trou est faiblement liée ($Ry^{ex} \ll \varepsilon_g$) et délocalisée sur de nombreux sites, l'interaction électron-trou est en partie écrantée par la constante

diélectrique du cristal. L'hamiltonien d'un exciton s'écrit :

$$\left[\frac{\mathbf{p}_c^2}{2m_c^*} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2m_v^*} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \right] \Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = (E - \epsilon_g) \Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \quad (1.21)$$

On procède ensuite exactement comme pour le problème de l'atome d'hydrogène : puisque le terme coulombien n'affecte que le mouvement relatif de l'électron et du trou, il est possible de séparer le mouvement du centre de masse de l'exciton et le mouvement relatif de la paire électron-trou. Pour cela on pose :

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h ; \quad \mathbf{R} = \frac{m_c^*\mathbf{r}_e + m_v^*\mathbf{r}_h}{m_c^* + m_v^*} \quad (1.22)$$

\mathbf{R} désignant le vecteur position du centre de masse de la paire électron-trou. L'équation 1.21 se ré-écrit avec ces opérateurs :

$$\left[\frac{\mathbf{P}^2}{2(m_c^* + m_v^*)} + \frac{\mathbf{p}^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\mathbf{r}} \right] \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = (E - \epsilon_g) \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \quad (1.23)$$

où les majuscules pour les lettres \mathbf{R} et $\mathbf{P} = -i\hbar\partial/\partial\mathbf{R}$ désignent les opérateurs du centre de masse, les minuscules \mathbf{r} et $\mathbf{p} = -i\hbar\partial/\partial\mathbf{r}$ ceux de la particule réduite de masse $\mu = \frac{m_c^*m_v^*}{m_c^* + m_v^*}$. Comme l'hamiltonien ne dépend pas de \mathbf{R} , les états-propres sont également états-propres de l'opérateur translation $e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{R}}$ et la fonction d'onde peut se factoriser en :

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{R}} \phi^{3D}(\mathbf{r}) \quad (1.24)$$

où Ω désigne le volume du cristal. En définissant η par l'égalité :

$$E = \epsilon_g + \frac{\hbar^2 K^2}{2(m_c^* + m_v^*)} + \eta \quad (1.25)$$

on obtient finalement :

$$\left(\frac{\mathbf{p}^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\mathbf{r}} \right) \phi^{3D}(\mathbf{r}) = \eta \phi^{3D}(\mathbf{r}) \quad (1.26)$$

La fonction d'onde de l'état fondamental 1S hydrogénoïde est :

$$\phi^{3D}(\mathbf{r}) = \frac{1}{(\pi a_0^{ex})^3} e^{-r/a_0^{ex}} \quad (1.27)$$

où a_0^{ex} est le rayon de Bohr de l'exciton :

$$a_0^{ex} = \frac{\hbar^2 \epsilon_0 \epsilon_r}{m e^2} \quad (1.28)$$

Les énergies propres valent : $E_n = -\frac{Ry^{ex}}{n^2}$. L'énergie de liaison de l'état fondamental est le Rydberg excitonique défini par :

$$Ry^{ex} = \frac{\mu e^4}{2\hbar^2 (\epsilon_0 \epsilon_r)^2} \quad (1.29)$$

Pour le GaAs, le rayon de Bohr vaut environ 12 nm et le Rydberg excitonique 4.8 meV .

Cette description de l'exciton est valable dans l'hypothèse simplificatrice où une seule paire électron-trou est créée dans le système. En effet, nous avons considéré l'interaction coulombienne uniquement entre un électron et un trou. Si plusieurs paires électron-trou sont créées, il faut prendre en compte l'interaction entre tous les constituants, ce qui devient très complexe.

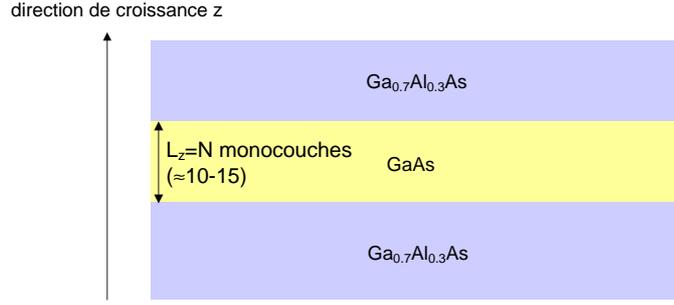


FIG. 1.8 – Schéma représentant une hétérostructure semi-conductrice formée par un puits quantique de GaAs étroit dans des barrières de $Ga_{0,7}Al_{0,3}As$.

Exciton de puits quantique Considérons maintenant une hétérostructure formée d'un puits quantique étroit de GaAs d'épaisseur L_z dans des barrières d' $Al_xGa_{1-x}As$, représenté sur la figure 1.8. x désigne la concentration d'aluminium (aux alentours de 30 % dans la suite). Nous notons z la direction de croissance, perpendiculaire au plan des couches. Nous supposons que les masses effectives et les constantes diélectriques sont identiques dans les 2 matériaux. L'hamiltonien de l'exciton s'écrit :

$$H = \varepsilon_g + \frac{\mathbf{p}_c^2}{2m_c^*} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2m_h^*} - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r\mathbf{r}} + V_e\Theta\left[z_e^2 - \frac{L_z^2}{4}\right] + V_h\Theta\left[z_h^2 - \frac{L_z^2}{4}\right] \quad (1.30)$$

où Θ désigne la fonction de Heaviside. Comme la présence des barrières rompt l'invariance par translation selon z , nous ne pouvons pas faire la transformation effectuée dans l'équation 1.22. Cependant, on peut définir \mathbf{R}_{xy} et ρ par :

$$(m_c^* + m_v^*)\mathbf{R}_{xy} = m_c^*\rho_e + m_h^*\rho_h ; \rho = \rho_e - \rho_h \quad (1.31)$$

Avec ces opérateurs, l'hamiltonien se réécrit :

$$H = \frac{\mathbf{p}_{xy}^2}{2(m_c^* + m_v^*)} + \frac{\mathbf{p}_{xy}^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r\sqrt{(\rho^2 + (z_e - z_h)^2)}} + \frac{\mathbf{p}_{z,e}^2}{2m_c^*} + \frac{\mathbf{p}_{z,h}^2}{2m_v^*} + V_e\Theta\left[z_e^2 - \frac{L_z^2}{4}\right] + V_h\Theta\left[z_h^2 - \frac{L_z^2}{4}\right] + \varepsilon_g$$

L'invariance par translation dans le plan des couches conduit à la factorisation de la fonction d'onde :

$$\Psi(\mathbf{R}_{xy}, \rho) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{K}_{xy} \cdot \mathbf{R}_{xy}} \Phi(\mathbf{z}_e, \mathbf{z}_h, \rho) \quad (1.32)$$

où $\hbar\mathbf{K}_{xy}$ désigne l'impulsion du centre de masse et $\Phi(z_e, z_h, \rho)$ est la solution fondamentale du problème hydrogénoïde. Le puits quantique considéré étant d'épaisseur 3-4 nm, donc inférieure au rayon de Bohr de l'exciton 2D (6 nm), nous pouvons négliger la corrélation électron-trou selon z . La fonction Φ peut alors se factoriser en un produit de fonctions décrivant le confinement selon z pour l'électron et pour le trou indépendamment et d'une fonction hydrogénoïde ϕ^{2D} :

$$\Phi(z_e, z_h, \rho) = N\chi_e(z_e)\chi_h(z_h)e^{-\rho/\lambda} = \chi_e(z_e)\chi_h(z_h)\phi^{2D}(\rho) \quad (1.33)$$

où N est une constante de normalisation et λ représente la distance moyenne électron-trou.

Exciton localisé par les boîtes quantiques de GaAs Nous avons considéré les interfaces du puits quantique comme parfaites. En réalité, lors de la croissance par épitaxie par jets moléculaires, les atomes ne s'agrègent pas parfaitement monocouche par monocouche. La croissance d'une monocouche a lieu en certains points de l'échantillon avant que la monocouche précédente ne soit complète, résultant en une rugosité des interfaces à plus ou moins grande échelle [62]. La figure 1.9 représente un puits quantique de N monocouches avec des fluctuations d'épaisseur d'une monocouche. Quand la croissance est optimisée, les interfaces sont lisses à l'échelle atomique et

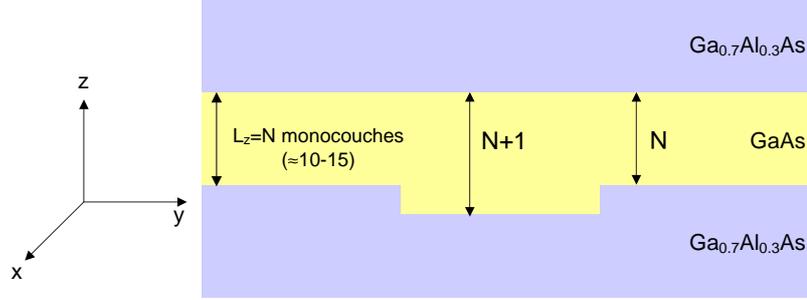


FIG. 1.9 – Schéma représentant les fluctuations d'épaisseur d'un puits quantique de GaAs étroit. La région du puits quantique constituée de $N+1$ monocouches de GaAs constitue une boîte quantique dite naturelle.

présentent des rugosités à une échelle grande devant le rayon de Bohr. Cela conduit à considérer que l'exciton dans ces puits quantiques est quasi bi-dimensionnel et que les fluctuations d'interface (de 2.83 d'épaisseur pour le GaAs [64]) affectent uniquement le mouvement du centre de masse de cet exciton bidimensionnel. On appelle boîtes quantiques naturelles ou bien boîtes quantiques à fluctuation d'interface les structures à l'origine de ce confinement tridimensionnel. Dans la direction de croissance, le confinement est celui dû au puits quantique. Dans le plan, la variation d'épaisseur du puits quantique localise le centre de masse de l'exciton.

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la fonction excitonique dans un puits parfait est décrite par la fonction enveloppe :

$$\Psi_{ex}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{K}_{xy} \cdot \mathbf{R}_{xy}} \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \sqrt{\frac{2}{\pi\lambda^2}} e^{-\rho/\lambda} \quad (1.34)$$

La fonction d'onde de l'exciton lié à la fluctuation d'épaisseur s'écrit alors :

$$\Psi_{ex}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = g_{loc}(\mathbf{R}_{xy}) \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \sqrt{\frac{2}{\pi\lambda^2}} e^{-\rho/\lambda} \quad (1.35)$$

où $g_{loc}(\mathbf{R}_{xy})$ est la fonction d'onde du centre de masse de l'exciton, localisé par la fluctuation d'épaisseur. L'ordre de grandeur de ce potentiel latéral est d'environ 15 meV pour les épaisseurs considérées. En réalité, les interfaces produites par l'épitaxie ne sont pas abruptes, et leur profil n'est pas connu pour chaque boîte quantique. La fonction d'onde du centre de masse que nous utiliserons est la suivante :

$$g_{loc}(\mathbf{R}_{xy}) = \left(\frac{1}{\pi\xi_x^2}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{x^2}{2\xi_x^2}} \left(\frac{1}{\pi\xi_y^2}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{y^2}{2\xi_y^2}} \quad (1.36)$$

où $\xi_{x,y} = \sqrt{\frac{\hbar}{M\omega_{x,y}}}$ décrit l'extension du centre de masse. Dans l'hypothèse isotrope où $L_x = L_y$, soit $\xi_x = \xi_y$, on pose $\xi^2 = \xi_x \xi_y$. La fonction d'onde d'essai du centre de masse se ré-écrit sous la

forme suivante :

$$g_{loc}(\mathbf{R}_{xy}) = \frac{1}{\sqrt{\pi\xi}} e^{-\frac{(x^2+y^2)}{2\xi^2}} \quad (1.37)$$

La relation entre ξ et les dimensions $L_{x,y}$ de la boîte quantique, obtenue dans une approche variationnelle, dépend de la forme de potentiel considéré. Nous établissons cette relation dans le cas d'un puits gaussien et d'un puits cylindrique au chapitre 3.

Finalement la fonction d'onde complète de l'exciton est donc le produit de la distribution gaussienne du centre de masse, de la fonction enveloppe décrivant le confinement du puits quantique selon z et de la fonction hydrogéoïde de l'exciton quasi 2D :

$$\Psi_{ex}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \frac{1}{\sqrt{\pi\xi}} e^{-\frac{R_{xy}^2}{2\xi^2}} \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \sqrt{\frac{2}{\pi\lambda^2}} e^{-\rho/\lambda} \quad (1.38)$$

1.3.2 Force d'oscillateur de l'exciton : influence du confinement

La connaissance de l'expression de la fonction d'onde excitonique nous permet d'aborder la force d'oscillateur des excitons. Nous établissons d'abord l'expression de la force d'oscillateur des excitons du GaAs massif, puis des excitons confinés dans un puits quantique. Enfin, nous analysons la force d'oscillateur des excitons localisés dans les boîtes quantiques naturelles et l'influence de la taille de la boîte quantique sur cette force d'oscillateur.

Force d'oscillateur des excitons dans le GaAs massif Dans l'approximation dipolaire électrique, l'élément de matrice qui décrit le couplage de l'exciton avec un mode du champ électromagnétique de vecteur d'onde \mathbf{k}_{ph} conduit à l'expression de la force d'oscillateur par unité de volume pour la transition excitonique [85] :

$$f_{3D} = \frac{2}{m_0 \hbar \omega_0} |M_\eta|^2 |\phi_{3D}(0)|^2 \quad (1.39)$$

où M_η est l'élément de matrice dipolaire électrique de transition entre la bande de valence et la bande de conduction pour l'ensemble du volume du cristal et pour une polarisation η .

Le terme $|\phi_{3D}(0)|^2 = 1/(\pi a_B^3)$ décrit la probabilité par unité de volume de trouver l'électron et le trou à une même position de l'espace : en augmentant le recouvrement des fonctions d'onde, l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou augmente la force d'oscillateur.

Force d'oscillateur des excitons de puits quantiques Nous venons de voir que la force d'oscillateur dépend fortement du degré de recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou. La restriction du mouvement relatif dû au confinement supplémentaire du puits quantique conduit aussi à une augmentation de la probabilité de recombinaison excitonique. La force d'oscillateur est proportionnelle à la surface du puits quantique car la structure n'est plus invariante selon la direction de croissance z . On définit alors la force d'oscillateur par unité de surface d'un exciton dans un puits quantique, pour une polarisation dans le plan du puits par [63] :

$$f_{xy} = \frac{2}{m_0 \hbar \omega_0} |M_{xy}|^2 |\phi_{2D}(0)|^2 \left| \int \chi_e(z_e) \chi_e(z_e) dz \right| \quad (1.40)$$

où le terme $|\phi_{2D}(0)|^2$ décrit la probabilité par unité de surface de trouver l'électron et le trou à une même position dans le plan (xy) . Avec les notations précédentes, ce terme vaut $|\Phi_{2D}(0)|^2 = \frac{2}{\pi\lambda^2}$. Cette expression montre que la force d'oscillateur augmente quand le rayon de Bohr effectif de

l'exciton bidimensionnel diminue.

L'invariance par translation, qui n'est plus que dans le plan (xy) , modifie le couplage exciton-photon : elle impose seulement la conservation du vecteur d'onde dans la plan. Par conséquent, un exciton de vecteur d'onde k_{xy} est couplé à tous les photons de vecteur d'onde ayant le même vecteur d'onde dans le plan k_{xy} , quel que soit leur vecteur d'onde k_z . Il existe donc une densité d'états finals pour le déclin radiatif de l'exciton, donnée par :

$$\rho(\mathbf{k}_{xy}, \omega) = \sum_{k_z} \delta(\hbar\omega - \sqrt{k_{xy}^2 + k_z^2}) = \frac{L_z}{2\pi} \frac{n}{\hbar c} \frac{2k_0}{\sqrt{k_0^2 - k_{xy}^2}} \Theta(k_0 - k_{xy}) \quad (1.41)$$

où $k_0 = \frac{nE_X(k_{xy}=0)}{\hbar c}$ et Θ désigne la fonction de Heaviside. Cette expression est non-nulle pour les excitons pour lesquels $k_{xy} < k_0$. Ces excitons sont dits radiants. Les excitons pour lesquels $k_{xy} \geq k_0$ sont dits non-radiants. Le vecteur d'onde limite $k_0 = \frac{nE_X(k_{xy}=0)}{\hbar c}$ pour les épaisseurs de puits considérées ($\sim 3 \text{ nm}$) et pour $E_X(k_{xy} = 0) \simeq 1.65 \text{ eV}$, vaut environ $k_0 \sim (30 \text{ nm})^{-1}$.

Pour des excitons transverses ($k_{xy} = 0$), le temps de vie radiatif est relié à la force d'oscillateur par la relation [65] :

$$\tau = \frac{n}{2\pi} \frac{4\pi\varepsilon_0 m_0 c}{e^2} \frac{1}{f_{xy}} \quad (1.42)$$

où n est l'indice du matériau. Pour un puits quantique de GaAs de 3 nm d'épaisseur, la force d'oscillateur typique est de l'ordre de $90 \cdot 10^{-5-2}$, soit un temps de vie de l'ordre de 7 ps [93] pour l'exciton en $k_{xy} = 0$. Les mesures effectuées par Deveaud et collaborateurs [66] sur un puits quantique de GaAs en excitation strictement résonante ont mis en évidence des temps de vie radiatifs de l'exciton en $k_{xy} = 0$ en accord avec ces prévisions théoriques ($10 \pm 4 \text{ ps}$).

Excitons localisés dans les boîtes quantiques naturelles Considérons maintenant le cas où l'exciton est localisé par une fluctuation d'épaisseur d'un puits quantique étroit. Du fait de la brisure d'invariance par translation, k_{xy} n'est plus un bon nombre quantique. Nous avons vu que la fonction d'onde d'un exciton localisé dans une boîte quantique naturelle est la suivante :

$$\Psi_{ex}(r_e, r_h) = \frac{1}{\sqrt{\pi\xi}} e^{-\frac{R_{xy}^2}{2\xi^2}} \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \sqrt{\frac{2}{\pi\lambda^2}} e^{-\rho/\lambda} \quad (1.43)$$

où ξ est la distance de localisation du mouvement du centre de masse dans l'espace réel. De façon équivalente, $1/\xi$ représente son extension dans l'espace réciproque. Si $1/\xi > k_0$, l'exciton 0D est une superposition d'excitons libres radiants ($k_{xy} < k_0$) et d'excitons libres non-radiants ($k_{xy} > k_0$). Une distance de localisation de l'ordre du rayon de Bohr $a_{2D} = 6 \text{ nm}$ correspond par exemple à un vecteur d'onde $1/\xi = (6 \text{ nm})^{-1} > k_0$. L'effet du potentiel latéral est donc d'induire une augmentation de la durée de vie radiative de l'exciton localisé par rapport à celle de l'exciton libre en $k_{xy} = 0$. Cet effet du confinement sur le taux de recombinaison radiative d'un exciton est calculé dans les références [67, 68]. Le taux de recombinaison radiative d'un exciton de trou lourd confiné dans une boîte quantique de GaAs vaut :

$$\Gamma_{loc} = \frac{1}{2} H(k_{ph}\xi) \Gamma^{PQ}(k_{xy} = 0) \quad (1.44)$$

avec :

$$H(\mu) = (2\mu - \frac{1}{\mu} D(\mu)) + 1 ; D(\mu) = e^{-\mu^2} \int_0^\mu e^{t^2} dt \quad (1.45)$$

Cette expression montre que :

- Dans la limite des très grandes boîtes quantiques, $1/\xi$ tend vers 0 et $H(\mu) \simeq 2$: le taux de recombinaison radiative tend vers celui de l'exciton libre en $k_{xy} = 0$
- Quand la taille latérale de la boîte quantique diminue, ξ tend vers 0, et à la limite où μ s'annule le taux de recombinaison tend vers :

$$\Gamma_{loc} \simeq \frac{4}{3} k_{xy}^2 \xi^2 \Gamma^{PQ}(k_{xy=0}) \quad (1.46)$$

Le taux de recombinaison radiative varie comme ξ^2 , où ξ^2 peut être interprété comme une surface de cohérence de la fonction d'onde de l'exciton [63]. Pour les boîtes quantiques dont l'extension latérale est supérieure au rayon de Bohr dans le puits quantique, cette surface augmente avec la taille de la boîte quantique et entraîne une diminution de la durée de vie radiative. Pour des boîtes quantiques dont l'extension latérale est inférieure au rayon de Bohr dans le puits, cette surface augmente au contraire quand on réduit la taille de la boîte quantique. Une façon intuitive de le comprendre est la suivante : pour les boîtes quantiques petites devant le rayon de Bohr, la diminution du rayon de la boîte quantique engendre une plus grande pénétration de la fonction d'onde excitonique dans la barrière du puits quantique, donc une diminution de $1/\xi$, donc une moins grande contribution des états non radiants et donc une plus grande force d'oscillateur.

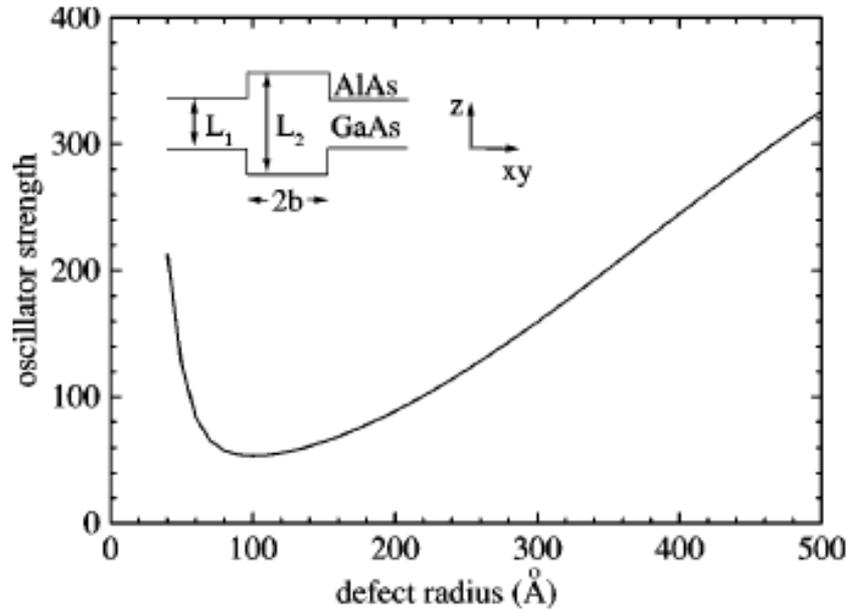


FIG. 1.10 – Force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs en fonction du rayon b de la boîte quantique naturelle de GaAs [56].

La dépendance de la force d'oscillateur en fonction du rayon de la boîte quantique est représentée sur la figure 1.10. La force d'oscillateur calculée dans la référence [56] présente un minimum pour un rayon de boîte quantique de l'ordre du rayon de Bohr. Comme nous venons de l'expliquer, la force d'oscillateur augmente avec l'extension du centre de masse ξ . Or pour des très grands rayons, le potentiel latéral localise très peu l'exciton qui est quasi-bidimensionnel ; il occupe une surface croissant avec le rayon. La force d'oscillateur augmente donc avec le rayon. Pour de très petites tailles de boîtes quantiques, le potentiel ne parvient pas non plus à localiser fortement l'exciton, dont le centre de masse occupe une surface d'autant plus grande qu'on réduit encore ce rayon. D'où le comportement en U avec une force d'oscillateur minimale pour une taille de boîte quantique de l'ordre du rayon de Bohr.

1.3.3 Intérêt des boîtes quantiques de GaAs pour le couplage fort

La figure 1.10 est extraite d'un article qui fait le point en 1999 sur la possibilité d'obtenir le couplage fort avec des boîtes quantiques insérées dans des micropiliers à l'état de l'art. Cet article montre tout d'abord que le couplage fort ne peut être atteint avec des boîtes quantiques d'InAs insérées dans des micropiliers à l'état de l'art. Des mesures d'absorption [135] ont montré que la force d'oscillateur des excitons dans les boîtes quantiques d'InAs est $f = 10$, en accord avec le temps de vie mesuré [26]. Les micropiliers à l'état de l'art présentant le rapport $\frac{Q}{\sqrt{V}}$ le plus favorable sont des piliers de diamètre $1 \mu m$ avec un facteur de qualité $Q = 2000$ [26] correspondant à une largeur de raie $\gamma_l = 0.6 meV$. Le dédoublement de Rabi calculé est de $100 \mu eV$, inférieur à la moyenne des largeurs de raie des états découplés qui est de $300 \mu eV$. Le passage du régime de couplage faible au régime de couplage fort ne s'obtient que pour une force d'oscillateur 10 fois plus importante. Les microdisques de $2 \mu m$ de diamètre qui, pour un confinement identique, multiplient le facteur de qualité par 6 [48] permettent de se placer au seuil de la transition entre les régimes de couplage faible et de couplage fort.

Les auteurs de la référence [56] montrent ensuite que la limite couplage faible/couplage fort peut être franchie en tirant parti des grandes forces d'oscillateur des excitons de boîtes quantiques de GaAs. Leur calcul (voir figure 1.10) prévoit en effet des forces d'oscillateur pouvant être 30 fois supérieures aux forces d'oscillateur des excitons dans les boîtes quantiques d'InAs. Des mesures d'absorption sur boîtes quantiques de GaAs naturelles effectuées en 2002 mettent en évidence des forces d'oscillateur jusqu'à 180 [19]. De telles boîtes quantiques, insérées dans des microcavités à l'état de l'art devraient permettre d'atteindre le régime de couplage fort.

1.4 Etat de l'art en 2003 - Expériences d'EDQC en régime de couplage faible

Les bases théoriques d'EDQC nous ont permis de montrer que les paramètres-clefs du système sont :

- le facteur de qualité et le volume effectif modal pour le mode de cavité ;
- la force d'oscillateur pour l'émetteur.

Après avoir brièvement décrit les cavités 0D et leurs performances à l'état de l'art en 2003, nous avons montré que les forces d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles sont très intéressantes pour le couplage fort. Néanmoins, les boîtes quantiques les plus étudiées dans le domaine des semi-conducteurs III-V en 2003 sont les boîtes quantiques d'InAs auto-organisées. Pour cette raison, les premières expériences d'électrodynamique en cavité ont été réalisées avec des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, insérées dans des microcavités GaAs/AlGaAs. De nombreux effets d'électrodynamique quantique en cavité en régime de couplage faible ont été démontrés dans ce système. Nous allons décrire les principaux dans cette partie.

1.4.1 Exaltation/inhibition de l'émission spontanée

La première démonstration de l'effet Purcell a été effectuée en 1998 avec un ensemble de boîtes quantiques d'InAs auto-assemblées [26]. Des facteurs d'exaltation de l'émission spontanée de 5 pour les micropiliers puis de 15 pour les microdisques en 2001 ont été démontrés [27]. L'inhibition de l'émission spontanée sur ensemble de boîtes quantiques a également fait l'objet de très belles expériences dans des micropiliers de GaAs/AlAs recouverts de métal [50]. Grâce à une réduction

des modes de fuite, le temps de vie radiatif de boîtes quantiques hors résonance a pu être inhibé d'un ordre de grandeur, et celui des boîtes quantiques en résonance exalté d'un facteur 2.

En 2001, Kiraz *et al.* [31] font une démonstration de l'effet Purcell avec une boîte quantique unique insérée dans un microdisque, en utilisant la variation de température pour mettre en résonance un exciton de boîte quantique avec le mode de galerie d'un microdisque entre 4 et 50 K [31]. Un raccourcissement du temps de vie radiatif de l'exciton confiné d'un facteur 6 est observé à la résonance.

1.4.2 Emission spontanée quasi-monomode

L'effet Purcell peut aussi être utilisé pour contrôler la polarisation des photons émis. En effet, le contrôle de la polarisation est un élément-clé de protocoles de cryptographie quantique basés sur la polarisation (notamment le protocole BB84 dû à Bennett et Brassard [30]), car ces protocoles nécessitent la préparation de photons dans une polarisation déterminée. L'utilisation de piliers à section elliptique permet de lever la dégénérescence en polarisation des modes qui s'établissent dans les micropiliers à section circulaire. Les micropiliers elliptiques présentent un doublet de modes fondamentaux polarisés linéairement, et de polarisations croisées. Les raies excitoniques en résonance avec l'un de ces modes présentent alors un fort degré de polarisation linéaire (jusqu'à 90 %), alors que les boîtes quantiques hors résonance ne montrent pas de polarisation préférentielle dans le plan des couches [51]. Ces expériences, réalisées en 1998, montrent que les photons sont émis dans un seul mode spatial et de polarisation. Ce point est un pré-requis pour la génération de photons indiscernables, abordée ci-dessous.

1.4.3 Génération de photons uniques indiscernables

Les expériences d'interférences à 2 photons reposent sur la nature bosonique des photons : quand 2 photons indiscernables, c'est-à-dire dans le même mode spatial et temporel arrivent sur une lame séparatrice 50/50, ils prennent toujours le même chemin. Ce phénomène s'appelle la coalescence et a été démontré pour la première fois en 2002 par Santori *et al.* [33] pour une boîte quantique insérée dans un micropilier à 4K. L'effet Purcell est crucial dans cette expérience. Il permet :

- que les photons soient émis dans un même mode spatial du micropilier
- de rendre le temps de vie (T_1) plus court que le temps de déphasage (T_2^*) qui brouillerait les interférences.

L'effet Purcell est également envisagé pour générer l'intrication en polarisation de paires de photons issus de la cascade radiative biexciton-exciton [52].

Synthèse : Les notions théoriques d'EDQC abordées en début de chapitre ont montré que pour renforcer l'interaction lumière-matière, nous devons disposer :

- d'un émetteur ayant une force d'oscillateur maximale, afin d'optimiser son couplage au mode de cavité résonant ;
- d'une cavité confinant le champ électromagnétique dans un volume modal minimal, et capable de stocker l'énergie électromagnétique du mode le plus longtemps possible

Après un bref tour d'horizon des cavités semi-conductrices, nous avons montré que le microdisque est, en 2003, une géométrie de cavité dont les figures de mérite Q et V sont très prometteuses pour l'obtention du régime de couplage fort. Nous avons ensuite montré que l'exciton des boîtes quantiques naturelles est un émetteur pour lequel de très grandes forces d'oscillateur sont attendues. Enfin, nous avons constaté que, si l'état de l'art en 2003 ne permet pas d'atteindre le régime de couplage fort avec les boîtes quantiques d'InAs, le franchissement de la limite couplage faible-couplage fort est attendu avec les boîtes quantiques naturelles de GaAs insérées dans les cavités à l'état de l'art.

Les objectifs de la thèse sont les suivants :

- Etudier les forces d'oscillateurs des boîtes quantiques naturelles de GaAs ;
- Développer et étudier des microdisques contenant ces boîtes quantiques ;
- Démontrer le couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique unique de GaAs en microdisque.

Chapitre 2

Présentation et caractérisation des échantillons étudiés

Au cours de cette thèse, nous avons étudié plusieurs échantillons présentant des boîtes quantiques naturelles de GaAs, obtenues dans des conditions de croissance différentes, selon essentiellement deux techniques. La plupart des mesures optiques effectuées lors de ce travail ont été réalisées sur 2 échantillons principaux, représentatifs des structures obtenues pour chacune de ces techniques.

Nous présentons les conditions de croissance des 2 types d'échantillons dans la partie 2.1. Les tailles typiques des boîtes quantiques dans les 2 types d'échantillon ont été déterminées par des analyses structurales présentée en 2.2. Nous abordons dans la partie 2.3 les mesures de caractérisation optique de macro et micro-photoluminescence réalisées sur ces échantillons. La partie 2.4 est consacrée à un tour d'horizon des principales études menées depuis 1993 sur les boîtes quantiques de GaAs.

2.1 Croissance épitaxiale

Cette première partie est organisée comme suit : la structure et les conditions de croissance du premier échantillon sont décrites en détails dans le paragraphe 2.1.1. Les modifications apportées pour la croissance du second échantillon sont développées dans le paragraphe 2.1.2.

2.1.1 Premier échantillon (nom de nomenclature S614)

La croissance de l'échantillon a été effectuée par F. Laruelle et A. Cavanna en épitaxie par jets moléculaires sur un substrat de GaAs selon le protocole suivant, résumé dans la figure 2.1 :

1. Après la croissance d'une couche de lissage de *GaAs*, la croissance d' $1.5 \mu\text{m}$ en $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}$ est effectuée à une température de substrat de 550°C . Cette couche est destinée à former le piédestal de la cavité à microdisque, comme nous le verrons au chapitre 5.
2. La température du substrat est ensuite montée à 620°C pour la croissance d'un super-réseau de 71 nm de composition moyenne en aluminium de 50%. Le rôle de ce super-réseau est de compenser la rugosité induite par la couche riche en aluminium.
3. Le puits quantique de GaAs de 3 nm , entouré de barrières d' $\text{Al}_{0.67}\text{Ga}_{0.33}\text{As}$ de 50 nm est déposé ensuite. Une interruption de croissance de 120 s à chaque interface du puits quantique a pour but de lisser la surface.

4. Un super-réseau identique au premier est alors déposé, afin de symétriser la structure.
5. Enfin, une couche de GaAs de 10 nm prévient la surface de l'échantillon contre une éventuelle oxydation.

2.1.2 Second échantillon (nom de nomenclature TC00)

Pour tenter d'obtenir de plus grandes boîtes quantiques, David Martrou a effectué une étude visant à optimiser les conditions de croissance. La détermination des conditions de croissance les plus favorables à l'obtention de grandes boîtes quantiques naturelles a conduit à quelques modifications par rapport au premier échantillon :

- Des recuits longs de 10 mn à 640 ° C sous flux d'arsenic sont effectués avant la croissance des boîtes quantiques, afin de lisser l'état de surface de l'échantillon.
- La température de croissance est baissée à 590 ° C pour la barrière supérieure afin de limiter l'interdiffusion des éléments III.

La structure des couches épitaxiées du second échantillon (TC00) est identique à celle du premier échantillon (S614), hormis l'épaisseur de la couche protectrice de GaAs en surface (réduite à 2 nm au lieu de 10 nm). La figure 2.1 résume les conditions de croissance épitaxiale et les structures des 2 échantillons.

Structure	Matériau	Epaisseur	Température S614	Température TC00	Modification apportées pour l'échantillon TC00
Couche protectrice	GaAs	10 nm	620 °C	590 °C	2 nm au lieu de 10 nm
Super-réseau	GaAs/Al _{0,5} Ga _{0,5} As	71 nm	620 °C	590 °C	
Barrière	Al _{0,67} Ga _{0,33} As	50 nm	620 °C	590 °C	Abaissement de la température à 590°C
Puits quantique	GaAs	3 nm	620 °C	600 °C	
Barrière	Al _{0,67} Ga _{0,33} As	50 nm	620 °C	600 °C	
Super-réseau	GaAs/Al _{0,5} Ga _{0,5} As	71 nm	620 °C	600 °C	
					Recuit de 10 mn à 640°C sous flux d'arsenic
Pied du microdisque	Al _{0,8} Ga _{0,2} As	1,5 µm	550 °C	555 °C	
					Recuit de 10 mn à 640°C sous flux d'arsenic
Couche de lissage	GaAs	1 µm	610 °C	610 °C	
Substrat	GaAs				

FIG. 2.1 – Tableau résumant la structure et les conditions de croissance des 2 échantillons.

2.2 Analyses structurales

Dans cette seconde partie, nous présentons les études de microscopie électronique en transmission (TEM) effectuées sur les 2 échantillons, ainsi que l'étude de microscopie à effet tunnel (STM pour Scanning Tunneling Microscope) ayant permis de déterminer les conditions de croissance optimales des boîtes quantiques naturelles de GaAs.

2.2.1 Premier échantillon (S614)

La microscopie électronique en transmission est une technique de microscopie basée sur le principe de diffraction des électrons. La limite de résolution dépend de la longueur d'onde de De Broglie des électrons (donc de leur accélération) et peut théoriquement atteindre le picomètre. Dans la pratique, les aberrations limitent la résolution à l'Angstrom. Ce mode d'imagerie est sensible

à la composition chimique de l'échantillon : le contraste de diffraction rend les parties plus riches en aluminium plus claires.

La figure 2.2 montre un exemple d'images obtenues au TEM en haute résolution par G. Patriarche au LPN. On observe le puits quantique au centre, entouré des barrières d' $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$. Les 3 images correspondent à une même région de l'échantillon. Sur chaque image, l'épaisseur du puits quantique est mesurée dans le rectangle indiqué.

- Sur l'image de gauche, l'épaisseur du puits quantique est mesurée au milieu de l'image : elle est de 11 monocouches.
- Sur l'image du centre, la mesure est faite environ 15 nm plus bas : le puits quantique fait 12 monocouches d'épaisseur.
- Sur l'image de droite, la mesure est faite environ 10 nm au-dessus de la première et montre un puits quantique de 13 monocouches.

Le déplacement de la fenêtre de mesure le long des couches épitaxiées montre que la taille latérale d'une zone de puits quantique à épaisseur donnée est de l'ordre de 5 à 15 nm. Ces images résultent d'une projection des boîtes quantiques dans le plan de coupe. Or, ces dernières présentent des orientations aléatoires par rapport au plan de coupe. On en déduit que la taille typique des boîtes quantiques est 5-30 nm sur cet échantillon, soit environ 1 à 5 fois le rayon de Bohr de l'exciton bidimensionnel.

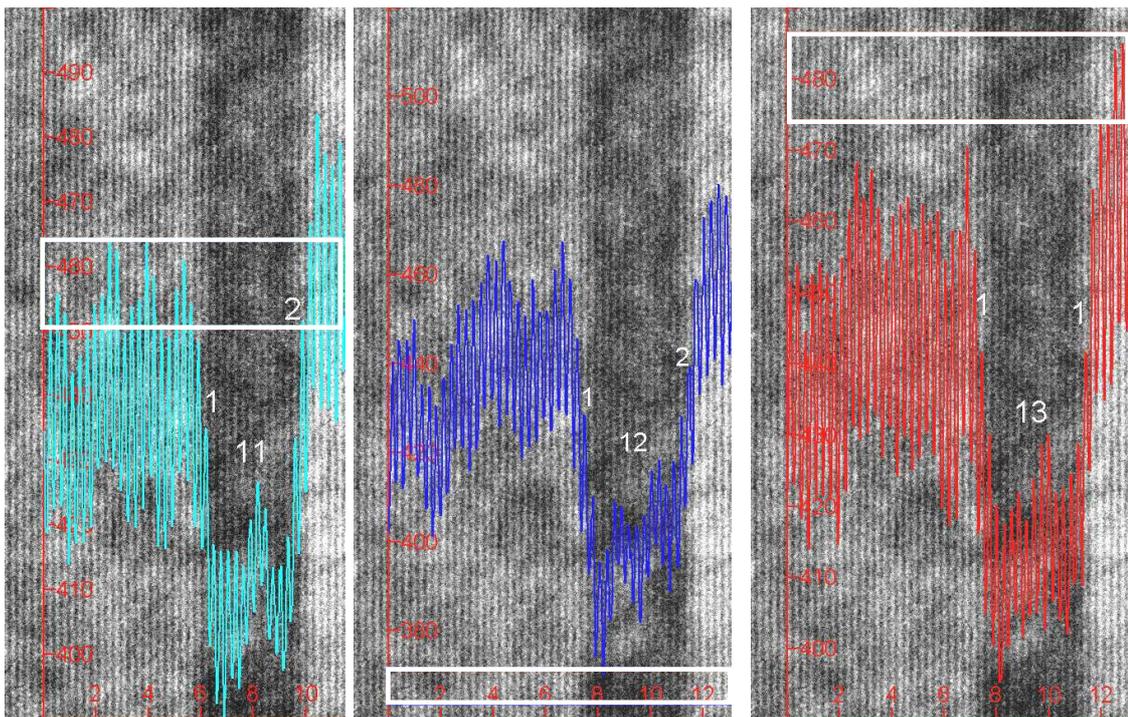


FIG. 2.2 – Images obtenues en microscopie électronique en transmission (TEM) haute résolution sur le premier échantillon (S614). Les 3 images correspondent à des mesures de l'épaisseur du puits quantique en différents points de la même zone du puits quantique. Le profil de composition dans la fenêtre de mesure est superposé aux images TEM. Le nombre central indique l'épaisseur mesurée du puits quantique (en monocouches de GaAs). Les 2 chiffres de part et d'autre correspondent à l'épaisseur (en monocouches) de l'interface entre le matériau puits et le matériau barrière.

2.2.2 Second échantillon (TC00)

Les conditions de croissance optimales pour l'obtention de boîtes quantiques les plus grandes possibles ont été déterminées par D. Martrou par une étude au microscope à effet tunnel (STM). En effet, le microscope à effet tunnel couplé à la chambre d'épitaxie donne accès à la morphologie de la surface de l'échantillon. Une étude préliminaire, sur des échantillons de test, où la croissance de l'échantillon est arrêtée après chaque étape de croissance a permis d'étudier les 2 interfaces du puits quantique pour différentes conditions de croissance.

La figure 2.3 montre chacune des interfaces du puits quantique juste après l'interruption de croissance, dans les conditions de croissance retenues pour le second échantillon (TC00). La surface de la première interface présente une certaine rugosité, tandis qu'après la croissance de 13 monocouches de GaAs, la seconde interface est lisse à l'échelle atomique. Dans cet échantillon, les boîtes quantiques sont donc formées soit par un trou dans la première interface d' $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ soit par un îlot dans la seconde interface. La soustraction des 2 images permet d'obtenir la taille et la densité des boîtes quantiques. L'analyse de ces images met en évidence des tailles latérales des boîtes quantique comprises entre 10 et 100 nm avec une densité d'environ $10 \mu m^{-2}$.

Cette étude montre donc que, dans les conditions de croissance utilisées pour le second échantillon (TC00), la taille typique des boîtes quantiques est bien plus grande que dans l'échantillon S614.

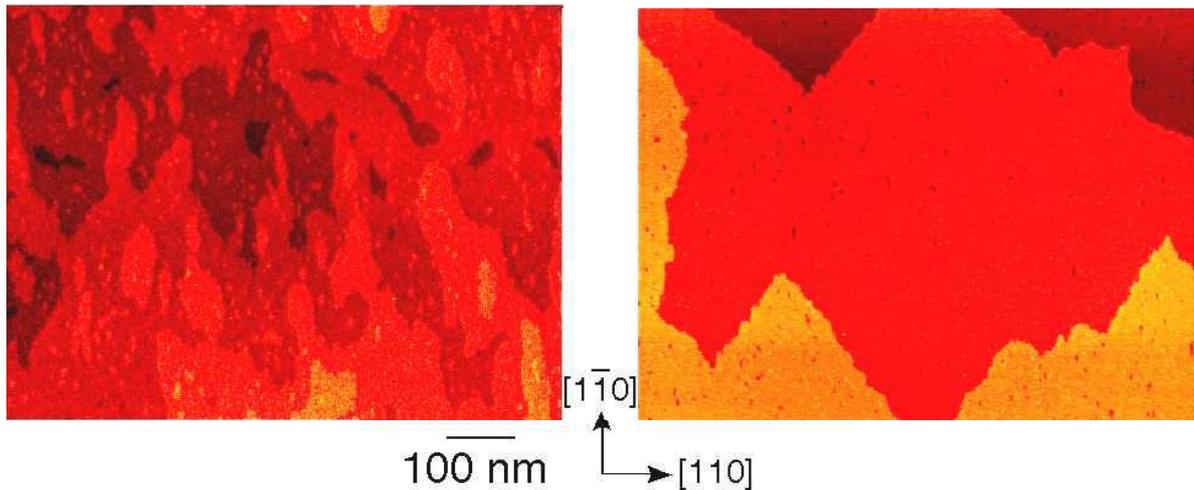


FIG. 2.3 – Images STM $800 * 600 \text{ nm}$ obtenues dans des conditions de croissance identiques à celles du second échantillon TC00. L'image de gauche correspond à la surface après déposition de la première barrière de 50 nm d' $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ et arrêt de croissance. L'image de droite correspond à la surface après croissance du puits quantique de GaAs de 13 monocouches et après l'interruption de croissance. Une variation de couleur correspond à une variation d'une monocouche.

Cette observation est corroborée par les études en TEM effectuées par G. Patriarche sur l'échantillon TC00. Sur les images haute résolution, on n'observe aucune fluctuation d'épaisseur du puits quantique (donc aucune boîte quantique naturelle) sur une échelle de plusieurs dizaines de nanomètres. Les boîtes quantiques n'apparaissent qu'en effectuant des mesures à moindre grossissement. La figure 2.4 montre un exemple d'image obtenue au TEM en champ sombre sur cet

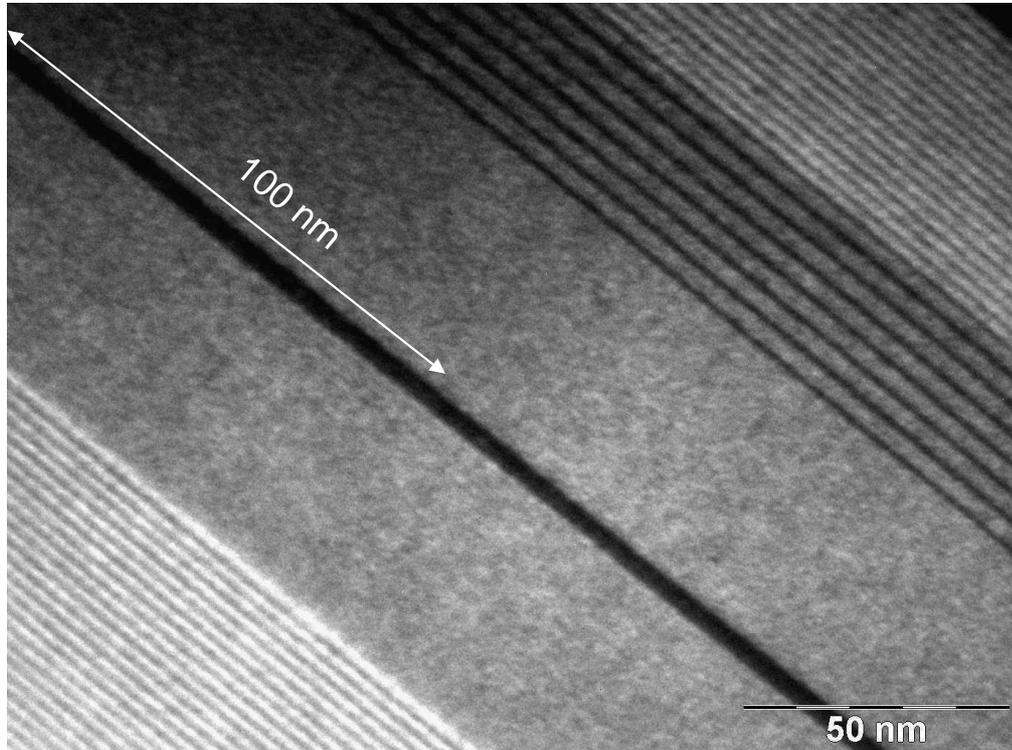


FIG. 2.4 – Images TEM en champ sombre sur le second échantillon (TC00). Au centre de l'image, on distingue le puits quantique de GaAs (couleur sombre). Une zone du puits quantique plus épaisse d'une monocouche et longue de 100 nm est mesurée dans la partie supérieure gauche de l'image.

échantillon, à moindre grossissement. Une variation d'épaisseur de +1 monocouche est mesurée dans la partie supérieure gauche de l'image. Elle correspond à une boîte quantique dont la dimension dans le plan d'observation est de 100 nm . L'ensemble des images TEM obtenues sur cet échantillon montre que la taille typique des boîtes quantiques est effectivement supérieure sur l'échantillon TC00 et confirme les études STM : l'échantillon TC00 présente des boîtes quantiques, dont les dimensions latérales sont très grandes devant le rayon de Bohr de l'exciton.

Dans la suite de ce manuscrit, pour faciliter la lecture, nous désignerons l'échantillon S614 "échantillon à petites boîtes quantiques" et l'échantillon TC00 "échantillon à grandes boîtes quantiques". Les boîtes quantiques de l'échantillon à petites boîtes quantiques seront indexées par des chiffres (QD1, QD2 et QD3), celles de l'échantillon à grandes boîtes quantiques par des lettres (QDa, QDb et QDc).

2.3 Caractérisation optique

Les premières mesures optiques que nous avons effectuées sur les échantillons épitaxiés sont des mesures de macro-photoluminescence, décrites dans le paragraphe 2.3.1. Nous discutons de la signature de la taille des boîtes quantiques des 2 échantillons dans les spectres de macro-photoluminescence. Le paragraphe 2.3.2 est consacré aux premières mesures d'émission de boîtes quantiques uniques en micro-photoluminescence et à l'identification des raies d'émission correspondant aux transitions excitonique et biexcitonique.

2.3.1 Macro-photoluminescence

La figure 2.5 représente des spectres obtenus en macro-photoluminescence à 4K, en excitation non-résonante. Le diamètre du faisceau d'excitation du laser titane-saphir est de $200\ \mu m$, ce qui ne permet pas de distinguer des boîtes quantiques uniques. On observe donc un ensemble de boîtes quantiques avec un élargissement inhomogène résultant de leur distribution statistique en taille.

Les échantillons présentent un gradient d'épaisseur de sorte que l'épaisseur du puits quantique varie de 4-5 monocouches sur l'ensemble de l'échantillon. Les spectres de la figure 2.5 sont obtenus pour différentes positions de l'échantillon le long du gradient et sont mesurés environ tous les $4\ mm$. Pour chaque spectre, l'épaisseur N est indiquée en monocouches de GaAs. N varie de 10 à 13 pour l'échantillon à petites boîtes quantiques et de 12 à 15 pour l'échantillon à grandes boîtes quantiques. Pour chaque position, on observe la luminescence des régions d'épaisseur N monocouches et $N + 1$ monocouches, à plus basse énergie. L'insert de la figure inférieure montre, par exemple, l'émission des épaisseurs 13/14 monocouches. L'excitation de la photoluminescence réalisée en détectant à l'énergie de la zone à 14 MC montre une forte absorption à l'énergie du puits quantique de 13 monocouches et une absorption très faible à l'énergie de la raie basse énergie. Cette observation montre que la luminescence observée à basse énergie est due à l'émission des boîtes quantiques. Quant au puits de N monocouches, il joue le rôle de "couche de mouillage" pour les boîtes quantiques de la zone $N+1$. Les mesures de micro-photoluminescence, exposées au paragraphe suivant, confirmeront que la raie basse énergie est bien constituée de boîtes quantiques, en mettant en évidence optiquement la nature discrète de ces états.

Intéressons-nous maintenant à la raie d'émission du puits quantique de 14 monocouches de l'échantillon à grandes boîtes quantiques (partie inférieure de la figure 2.5). On observe un affinement progressif de la raie d'émission (de bas en haut sur la figure), d'autant plus importante que la fraction de monocouche de GaAs déposée est grande. Cela signifie que les boîtes quantiques deviennent de plus en plus grandes. En effet, la dépendance de l'énergie d'émission en fonction de la taille de la boîte quantique est beaucoup moins forte pour les grandes tailles que pour les petites tailles de boîtes quantiques. Autrement dit, l'élargissement inhomogène est d'autant moins important que les boîtes quantiques sont grandes. La figure 2.5 met en évidence le décalage spectral vers les basses énergies ainsi que la réduction de l'élargissement inhomogène qui l'accompagne.

Les largeurs de raie de l'échantillon à petites boîtes quantiques sont systématiquement plus grandes ($\sim 5 - 6\ meV$) que celles de l'échantillon à grandes boîtes quantiques, pour cette même raison : l'élargissement inhomogène plus important est la signature de tailles de boîtes quantiques plus petites.

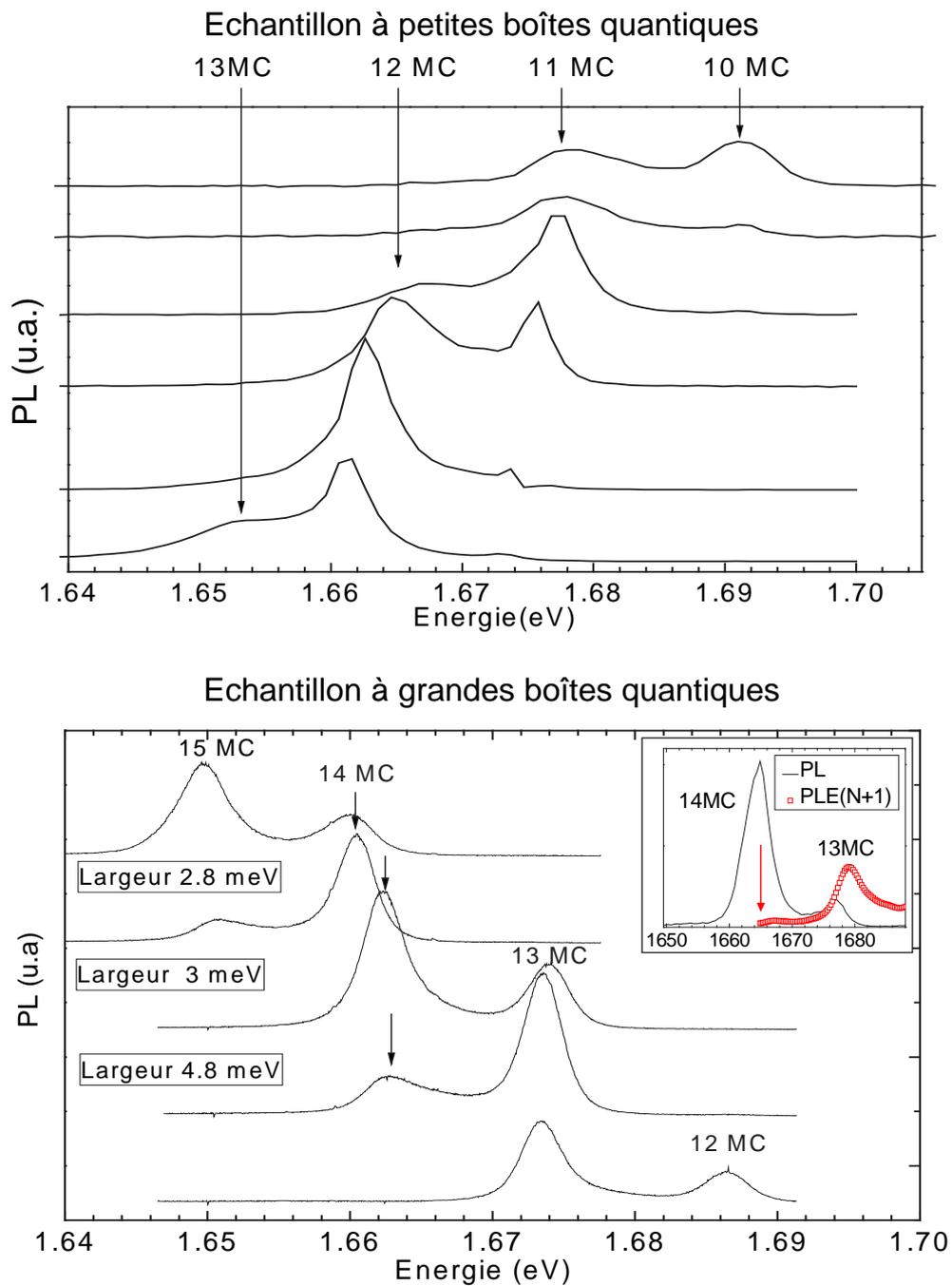


FIG. 2.5 – Spectres obtenus en macrophotoluminescence sur les échantillons non-processés à 4 K. En haut : Sur l'échantillon à petites boîtes quantiques. En bas : sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques. Les différents spectres sont mesurés en différents points de l'échantillon. Le nombre de monocouches de *GaAs* correspondant à l'énergie de l'émission est indiqué. Pour les 3 spectres centraux de l'échantillon à grandes boîtes quantiques, la largeur de la raie marquée par une flèche est indiquée sur le côté. Insert : spectre de macrophotoluminescence sur la région de 13-14 MC et spectre d'excitation de la photoluminescence (symboles) réalisé en détectant à l'énergie de la raie à 14 MC indiquée par une flèche. On observe une absorption très faible à l'énergie de la raie de 14 MC et un front d'absorption marqué à l'énergie de la zone de 13 MC d'épaisseur.

2.3.2 Micro-photoluminescence

Principe de l'isolation de boîtes quantiques uniques : La spectroscopie de boîtes quantiques naturelles uniques a été initiée par Brunner *et al.* en 1994 [1, 5], dans une expérience où la résolution spatiale est obtenue à l'aide d'un diaphragme dans le plan image de la photoluminescence, ce qui permet de réduire la taille effective de la sonde de $25 \mu m$ jusqu'à $1.5 \mu m$. Comme

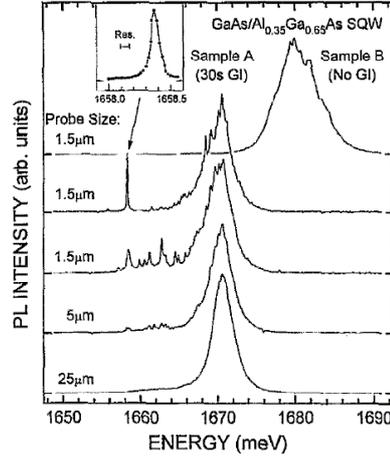


FIG. 2.6 – [5] Spectres de micro-photoluminescence sur l'échantillon B (avec interruption de croissance aux interfaces du puits quantique) et sur l'échantillon A (sans interruption de croissance). La taille $2r_e$ de la sonde est indiquée à gauche. L'insert montre une raie discrète de luminescence avec une résolution de $70 \mu eV$.

on peut le voir sur la figure 2.6, la réduction progressive de l'ouverture du diaphragme fait apparaître des pics discrets (de largeur inférieure à $0.1 meV$) d'émission à basse énergie de la raie large d'émission d'un puits quantique. Le nombre de ces pics discrets, attribués aux excitons localisés par les boîtes quantiques, diminue avec la taille de la sonde.

D'autres techniques permettent d'isoler des boîtes quantiques uniques. En 1994, Marzin *et al.* réalisent la première expérience de μ -PL sur boîtes quantiques uniques d'InAs, dans laquelle l'isolation de boîtes quantiques est obtenue par gravure de mesas de taille micrométrique [3]. Cette structuration spatiale de l'échantillon permet de sélectionner un nombre d'émetteurs fixé par la densité de boîtes quantiques épitaxiées et par la surface du méso.

Les microdisques que nous utilisons comme cavité étant des structures gravées, ils jouent le rôle de méso pour l'isolation de boîtes quantiques uniques, tout en constituant une cavité, comme nous le verrons au chapitre 5.

La figure 2.7 présente un spectre de micro-photoluminescence sur un microdisque d' $1 \mu m$ de diamètre, obtenu sur l'échantillon à petites boîtes quantiques, au moyen du dispositif expérimental de photoluminescence décrit dans l'annexe A. Cette figure montre une raie discrète à basse énergie correspondant à l'émission d'un état 0D. On en déduit que la raie basse énergie de macro-photoluminescence (d'épaisseur $N + 1$ monocouches) est constituée d'un ensemble de raies discrètes dont l'émission est distribuée sur un intervalle de quelques meV du fait de leur distribution statistique en taille. A plus haute énergie, on observe une raie plus large, à l'énergie d'émission du puits quantique d'épaisseur N monocouches observée en macro-photoluminescence. La présence de nombreuses raies discrètes dans le puits est attribuée à des états localisés par les fluctuations d'alliage dans les barrières d' $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$.

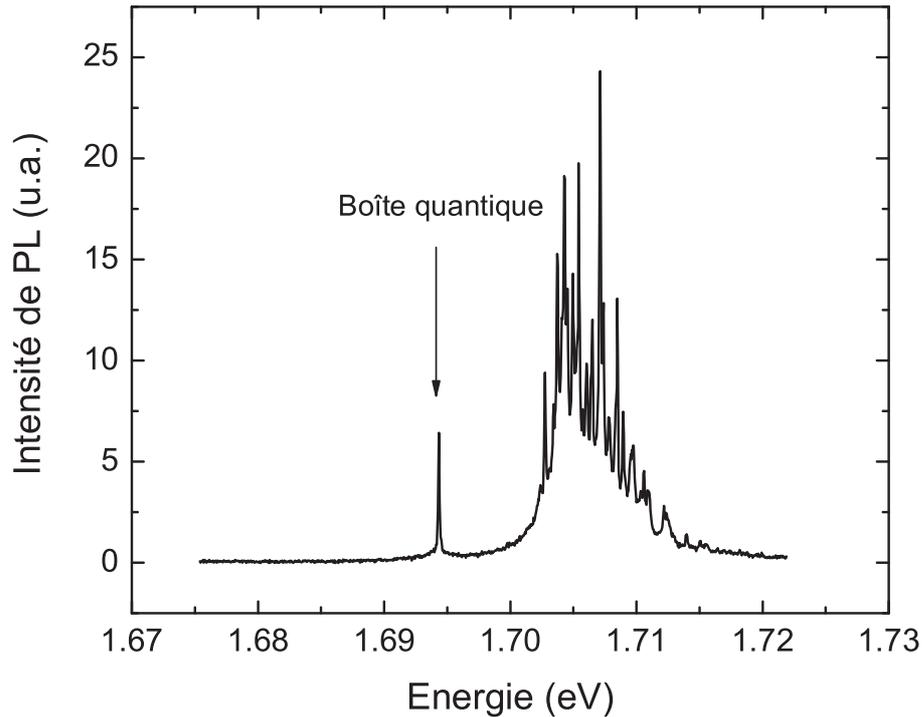


FIG. 2.7 – Exemple de spectre de micro-photoluminescence sur un microdisque d' $1\ \mu\text{m}$ de diamètre mettant en évidence la raie discrète de l'émission d'un exciton confiné dans une boîte quantique isolée, nommée QD1.

Identification de l'exciton et du biexciton Nous avons vu qu'à basse puissance, le spectre de $\mu\text{-PL}$ ne présente qu'une seule raie discrète isolée, ce qui prouve que le microdisque contient une seule boîte quantique, ou tout au moins une seule boîte quantique optiquement active. Dans la suite du manuscrit, cette boîte quantique est nommée QD1.

La figure 2.8 donne l'évolution de la PL de la boîte quantique QD1 en fonction de la puissance d'excitation. Lorsqu'on augmente la puissance d'excitation, on voit apparaître une seconde raie, notée XX, à plus basse énergie. Elle est associée à la transition fondamentale de la boîte quantique mais pour un état de remplissage de la boîte quantique de 2 excitons. Cet état est appelé biexciton. La différence d'énergie de recombinaison entre l'exciton et le biexciton est due à l'interaction coulombienne, renforcée par le confinement tridimensionnel des porteurs. La perturbation à l'énergie de recombinaison d'un exciton en présence d'un autre exciton est l'énergie de liaison du biexciton ; elle vaut ici $2.7\ \text{meV}$. Cette énergie de liaison dépend de la largeur du puits quantique et de la taille latérale des boîtes quantiques [7]. Dans la littérature, cette énergie de liaison varie selon les échantillons : une énergie de liaison de $4.2\ \text{meV}$ est reportée dans l'article de Brunner *et al.* [1] pour une largeur de puits quantique de $3.4\ \text{nm}$ et des barrières d' $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$, et de $3.6\ \text{meV}$ dans un article de Gammon *et al.* [8] pour une largeur de puits quantique de $4.2\ \text{nm}$ et des barrières d' $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$.

Pour les plus fortes puissances, la raie d'émission du biexciton devient asymétrique, avec un épaulement à basse énergie. Nous étudierons la forme de raie du biexciton au chapitre 4.

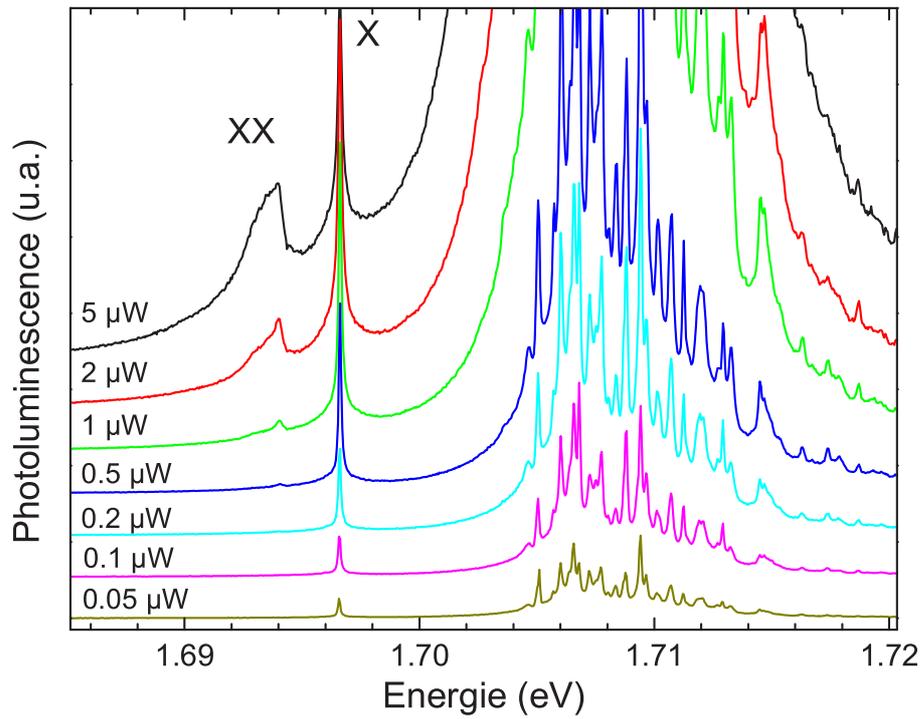


FIG. 2.8 – Spectres de micro-photoluminescence obtenus à 4 K à différentes puissances d’excitation sur le microdisque contenant la boîte quantique QD1. La puissance d’excitation est indiquée au-dessus de chaque spectre. Les spectres ont été décalés verticalement par souci de clarté. A basse puissance, on observe une seule raie discrète isolée, notée X. Une seconde raie apparaît, notée XX, apparaît aux plus fortes puissances.

Dépendance en puissance des intensités intégrées L'intensité intégrée pour l'exciton et pour le biexciton de la boîte quantique QD1 est tracée en fonction de la puissance sur la figure 3.12. La dépendance de l'intensité de la raie excitonique en fonction de la puissance est linéaire à basse puissance. En effet, l'intensité d'émission de l'exciton est proportionnelle à la probabilité d'avoir un exciton dans la boîte quantique. A faible puissance, cette probabilité dépend linéairement de la puissance, car on injecte moins qu'un exciton en moyenne par temps de vie de l'exciton. Quand la puissance augmente, la raie X sature, passe par un maximum puis diminue. On est alors dans un régime où l'on injecte en moyenne plus d'un exciton par temps de vie de l'exciton. Par conséquent, la probabilité d'avoir un seul exciton dans la boîte quantique diminue.

La raie XX croît de façon quadratique avec la puissance à faible puissance d'excitation, car son intensité est proportionnelle à la probabilité de présence de 2 excitons dans la boîte quantique.

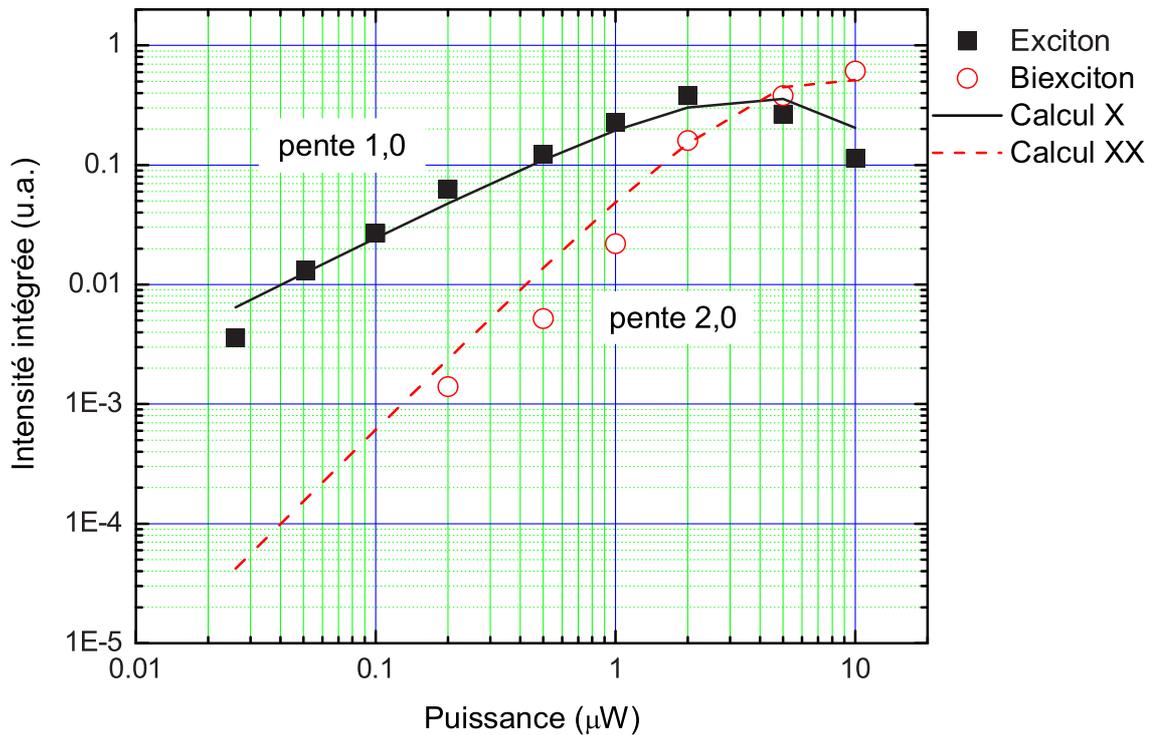


FIG. 2.9 – Intensité intégrée de l'exciton (symboles carrés) et du biexciton (symboles ronds) en fonction de la puissance d'excitation sur la boîte quantique QD1 à 4 K. Les intensités calculées sont en traits pleins pour l'exciton et pointillés pour le biexciton.

Modélisation simple des intensités intégrées en excitation continue Afin de rendre compte des intensités intégrées des raies observées, on utilise un modèle de type équation-bilan, développé par E. Moreau dans sa thèse [80]. La démarche est la suivante : nous allons considérer les différents états de remplissage de la boîte quantique, avec n excitons. L'évolution d'un état à n excitons est gouvernée par le taux de recombinaison radiative de cet état et par le taux d'injection dépendant de la puissance incidente. Nous calculons ensuite les probabilités de chacun de ces états en régime stationnaire, et en déduisons les intensités d'émission correspondantes.

On note $1/t_n$ le taux de recombinaison radiative associé au remplissage de la boîte quantique avec n excitons et $1/t_a$ le taux d'injection dans la boîte quantique, proportionnel à la puissance d'excitation $P = \frac{B}{t_a}$ où B est un coefficient de proportionnalité. On suppose que l'injection des porteurs est aléatoire et que les phénomènes de capture dans la boîte quantique sont indépendants les uns des autres. L'évolution de la probabilité p_n de remplissage de la boîte quantique avec n excitons évolue selon la loi :

$$\frac{dp_n}{dt} = \frac{p_{n+1}}{t_{n+1}} + \frac{p_{n-1}}{t_a} - p_n \left(\frac{1}{t_a} + \frac{1}{t_n} \right) \quad (2.1)$$

Pour $n = 0$, l'équation 2.1 s'écrit :

$$\frac{dp_0}{dt} = \frac{p_1}{t_1} - \frac{p_0}{t_a} \quad (2.2)$$

En régime stationnaire, $\frac{dp_n}{dt} = 0 \forall n$. On obtient par récurrence la relation suivante :

$$p_n = \frac{\prod_{i=1}^n t_i}{t_a^n} p_0 \quad (2.3)$$

De plus, les probabilités sont normalisées à 1 :

$$\sum_{i=0}^n p_i = 1 \quad (2.4)$$

d'où l'on en déduit :

$$p_n = \frac{\prod_{i=1}^n t_i / t_a^n}{\sum_{k=0}^{+\infty} (\prod_{i=1}^k t_i) / t_a^k} \quad (2.5)$$

Nous faisons à ce stade l'hypothèse supplémentaire que le taux de recombinaison de n excitons t_n est égal à n fois le recombinaison de chaque exciton, c'est-à-dire :

$$\frac{1}{t_n} = \frac{n}{t_1} \quad (2.6)$$

Les probabilités p_n obéissent alors à une loi poissonnienne :

$$p_n = \frac{1}{n!} \left(\frac{t_1}{t_a} \right)^n e^{-\frac{t_1}{t_a}} \quad (2.7)$$

L'intensité de la raie X est proportionnelle à la probabilité de présence d'un exciton et au taux de recombinaison $1/t_1$:

$$I_X(P) = A \frac{p_1}{t_1} = \frac{AP}{B} e^{-\frac{Pt_1}{B}} \quad (2.8)$$

De même, l'intensité de la raie XX est proportionnelle à la probabilité de présence de 2 excitons et au taux de recombinaison de $1/t_2 = 2/t_1$:

$$I_{XX}(P) = A \frac{p_2}{t_2} = \frac{AP^2 t_1}{B^2} e^{-\frac{Pt_1}{B}} \quad (2.9)$$

où A est un coefficient de proportionnalité. En définissant $I_{sat} = A/t_1$ et $P_{sat} = B/t_1$, on obtient finalement :

$$I_X(P) = I_{sat} \frac{P}{P_{sat}} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (2.10)$$

$$I_{XX}(P) = I_{sat} \frac{P^2}{P_{sat}^2} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (2.11)$$

où les coefficients I_{sat} et P_{sat} sont ajustés aux données expérimentales. La figure 3.12 montre le résultat du calcul avec $I_{sat} = 1$ et $P_{sat} = 3.8$. Le modèle rend bien compte de la forme générale des 2 courbes. Le rapport des intensités I_{XX}/I_X n'est toutefois pas bien reproduit. Nous établirons au chapitre 4 un modèle plus élaboré concernant le biexciton, qui rend mieux compte des données expérimentales. En première approche, ce modèle simple permet d'identifier la seconde raie du spectre de la figure 2.8 apparaissant à plus forte puissance. Il rend compte de la dépendance linéaire (resp. quadratique) de l'intensité d'émission de l'exciton (resp. le biexciton) avec la puissance d'excitation.

Pour résumer cette section, nous retiendrons que :

- Les spectres de macro-photoluminescence confirment que les boîtes quantiques sont plus grandes dans le second échantillon (TC00) que dans le premier (S614).
- Les raies discrètes des états 0D sont observées en micro-photoluminescence. La transition fondamentale de la boîte quantique a lieu à des énergies différentes pour les états de remplissage $n = 1$ et $n = 2$ de la boîte quantique. Nous avons observé et modélisé la dépendance linéaire (resp. quadratique) de la transition excitonique (resp. biexcitonique).

2.4 Quelques repères bibliographiques sur les boîtes quantiques naturelles de GaAs

Nous situons l'origine de la découverte des boîtes quantiques naturelles en 1991, dans un article de D. Gammon *et al.* [4]. Cet article apporte la réponse à une controverse alors en cours sur les interfaces des puits quantiques : alors que les études optiques effectuées sur les puits quantiques montrent que les puits quantiques à l'état de l'art sont lisses sur une échelle du micron [9], les études structurales montrent qu'il existe des rugosités et des fluctuations d'alliage à petite échelle [10, 11]. Gammon *et al.* montrent dans la référence [4] que la structure des puits quantique est en fait bimodale. Les spectres de macro-photoluminescence obtenus sur des puits quantiques de GaAs très étroits ayant subi des arrêts de croissance aux interfaces sont similaires à ceux que nous avons analysés dans la partie 2.3. Pour chaque position du faisceau d'excitation, 2 raies sont observées, correspondant à des épaisseurs du puits quantique différant d'une monocouche. Le rapport de l'écart entre les raies sur leur largeur est de 0.15, ce qui est l'état de l'art [12]. Ce rapport montre donc que les puits quantiques sont très lisses à grande échelle.

Les auteurs étudient différents échantillons, dans lesquels la température du substrat pendant la croissance est variée. Ils observent en macro-PL des différences d'énergie d'émission entre les différents échantillons. Le raisonnement tenu est le suivant : si les interfaces étaient parfaitement lisses, l'énergie des excitons du puits quantique serait indépendante de l'échantillon et dépendrait seulement des propriétés fondamentales du GaAs et de l'AlAs. Comme ce n'est pas le cas, ils en concluent que des micro-rugosités causent des changements d'énergie de confinement de l'exciton. En plus de la structure à grande échelle des interfaces du puits quantique, il existe donc une structure à petite échelle. De plus, cette structure à petite échelle dépend de la température du substrat pendant la

croissance.

La terminologie de boîtes quantiques apparaît 3 ans plus tard, lorsque Brunner *et al.* [1, 5] puis Zrenner *et al.* [13] mettent en évidence la nature discrète des états 0D à travers les premières expériences de micro-photoluminescence. La réduction de la taille du faisceau d'excitation (jusqu'à 1 μm) fait apparaître des raies discrètes très fines ($< 0.1 meV$) en micro-photoluminescence. Les premières expériences de μ -PLE rapportées par Brunner *et al.* [1] mettent en évidence des états excités discrets et le front d'absorption 2D du puits quantique ayant une monocouche de moins. Les auteurs mesurent également l'intensité intégrée en fonction de la puissance, et identifient l'exciton et le biexciton. En modélisant le potentiel latéral créé par la fluctuation d'épaisseur par un puits quantique gaussien, des tailles de boîtes quantiques de l'ordre de 100 nm sont déduites des mesures de PLE [6].

En 1996, Gammon *et al.* montrent que les raies excitoniques présentent une structure fine [14] de 20 à 50 μeV , liée à l'élongation des boîtes quantiques le long de l'axe cristallographique $[-110]$. Ces raies sont polarisées linéairement. En 2000, c'est la structure hyperfine de la raie qui est sondée dans des expériences de magnéto-optique [15] ainsi que le déplacement Overhauser, bien connu dans les matériaux massifs. Les auteurs montrent que l'exciton interagit avec les noyaux (environ 10^5) du réseau cristallin, et démontrent qu'il est possible de polariser optiquement environ 65% de ces noyaux en 3s.

Des expériences d'oscillations de Rabi sur l'exciton [16] en 2001 et le biexciton [16] en 2002 conduisent à la réalisation d'une porte logique quantique tout-optique en 2003 [18].

Nous terminons ce bilan bibliographique avec les résultats qui sont les plus intéressants pour la perspective du couplage fort ; il s'agit des mesures de force d'oscillateur des excitons localisés par les boîtes quantiques naturelles de GaAs. Une étude des forces d'oscillateur, réalisée en 2002 sur plusieurs boîtes quantiques, à travers des expériences d'absorption [19], démontre des forces d'oscillateur excitoniques f variant selon les boîtes quantiques d'un même échantillon de 45 à 180. L'ordre de grandeur de ces forces d'oscillateur est en accord avec les forces d'oscillateur déduites des expériences de contrôle cohérent [16].

Synthèse : Les 2 types d'échantillons ont été réalisés dans des conditions de croissance différentes. En conséquence, nous disposons de 2 échantillons ayant des tailles typiques de boîtes quantiques différentes :

- un échantillon dit à petites boîtes quantiques, avec des boîtes quantiques de taille typique 1 à 5 fois le rayon de Bohr de l'exciton bidimensionnel ($\simeq 5 - 30 nm$)
- un échantillon dit à grandes boîtes quantiques, avec des boîtes quantiques très grandes devant le rayon de Bohr bidimensionnel, pouvant atteindre plus de 100 nm .

Nous allons maintenant étudier les propriétés optiques des excitons localisés dans ces boîtes quantiques afin d'évaluer leur force d'oscillateur et leur potentiel pour le couplage fort.

Chapitre 3

Force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs

La force d'oscillateur caractérise l'intensité du couplage de l'exciton au champ électromagnétique et nous intéresse au premier plan pour le régime de couplage fort. Ce chapitre est dédié à l'étude de la force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs, à travers des mesures de micro-photoluminescence résolues en temps. Ces mesures ne constituent pas une mesure directe de la force d'oscillateur, généralement obtenue par des expériences d'absorption [135, 19]. Néanmoins, nous allons voir qu'elles fournissent de nombreuses informations sur le comportement dynamique des boîtes quantiques.

Après une brève introduction au principe de la micro-PL résolue en temps dans la partie 3.1, nous faisons la démonstration expérimentale dans la partie 3.2 de la corrélation de la taille latérale des boîtes quantiques naturelles de GaAs à leur force d'oscillateur. Dans la partie 3.3, nous mettons en évidence la cascade radiative biexciton-exciton dans l'échantillon à petites boîtes quantiques. La dynamique d'émission dans les grandes boîtes quantiques est étudiée dans la partie 3.4. Un modèle, unifiant les différentes observations sur les 2 échantillons, est développé dans la partie 3.5. Enfin, dans la partie 3.6, nous présentons des mesures complémentaires de statistique d'émission de l'exciton sur les 2 échantillons.

3.1 Principe de la micro-photoluminescence résolue en temps

Cette première partie introduit brièvement le dispositif expérimental de micro-PL résolue en temps et le principe d'analyse des mesures.

3.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour étudier la dynamique des boîtes quantiques est schématisé sur la figure 3.1. L'excitation est délivrée par un laser titane saphir pulsé accordable sur la plage 710-850 nm , délivrant des impulsions d'environ 3 ps à 800 nm (10 ps vers 720 nm) à une fréquence de 82 MHz , c'est-à-dire toutes les 12.5 ns . L'excitation non-résonante à 720 nm est ensuite focalisée par un objectif de microscope sur l'échantillon, maintenu à 4 K par un cryostat à hélium liquide à doigt froid. Le diamètre du faisceau d'excitation sur l'échantillon est d'environ 2 μm . Un système d'imagerie permet de visualiser l'échantillon et le faisceau laser. Le signal de photoluminescence est collecté par le même objectif de microscope puis dispersé spectralement par

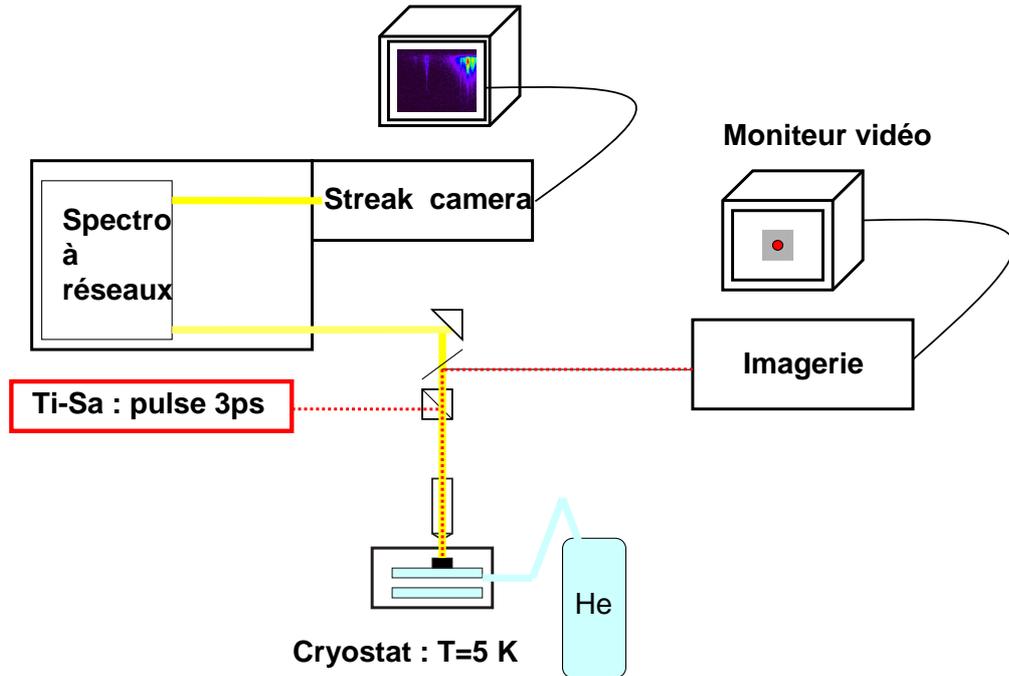


FIG. 3.1 – Schéma représentant le dispositif expérimental de micro-photoluminescence résolue en temps.

un spectromètre à réseau de 32 cm et analysé par une caméra à balayage de fente. Dans la caméra à balayage de fente, les photons sont convertis en électrons par une photocathode. Ces électrons sont défléchis par une tension périodique, synchronisée sur les impulsions du laser, perpendiculaire à la trajectoire des électrons. Cette déflexion permet d'obtenir la résolution temporelle. L'absorption de ces électrons par un écran de phosphore permet de visualiser le signal résolu en temps et en longueur d'onde sur un écran CCD. Nous avons privilégié la résolution spectrale à la résolution temporelle; la résolution temporelle de notre dispositif lors des mesures présentées ci-après est de 30 ps et la résolution spectrale de 0.25 meV .

3.1.2 Analyse spectrale et temporelle : exemple du puits quantique.

Un exemple d'image obtenue à la caméra à balayage de fente sur microdisque unique sur l'échantillon à petites boîtes quantiques est présenté en figure 3.2. L'énergie est en abscisse, le temps en ordonnée. L'intensité apparaît en fausses couleurs. A partir de cette image, il est possible de tracer des spectres à un instant donné en intégrant verticalement le signal avec la fenêtre temporelle d'intégration souhaitée. La plage d'intégration est matérialisée sur la figure 3.2 par un rectangle. Les raies discrètes à 1697.7 meV et 1695 meV correspondent à l'émission de l'exciton et du biexciton de la boîte quantique QD1, identifiés au chapitre 2 sous excitation continue. L'émission du puits quantique a lieu à plus haute énergie, sous forme d'une raie large.

Il est également possible de tracer des profils temporels en intégrant horizontalement le signal à une énergie donnée, avec la fenêtre d'intégration spectrale souhaitée. Un exemple de profil temporel obtenu est représenté sur la figure 3.3. Il s'agit du profil du puits quantique. L'origine des temps est fixée par l'impulsion laser. L'analyse temporelle de l'émission est assez complexe et a donné lieu à de nombreuses études sur les puits quantiques dans les années 1990. Il s'agit

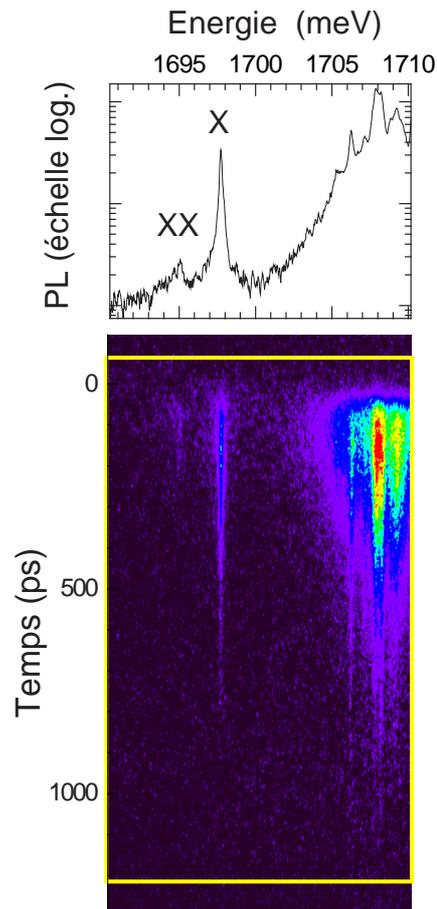


FIG. 3.2 – Image obtenue à la caméra à balayage de fente sur l'échantillon à petites boîtes quantiques sur le microdisque contenant la boîte quantique QD1. La plage d'énergie en abscisse est de 20 meV , la plage temporelle en ordonnée est de 2 ns . L'intensité est en fausses couleurs. Les raies discrètes à basse énergie correspondent aux excitons de boîtes quantiques. Le continuum à haute énergie correspond au puits quantique. Par intégration verticale sur l'ensemble de la fenêtre de 20 meV , on obtient le spectre représenté dans la partie supérieure de la figure.

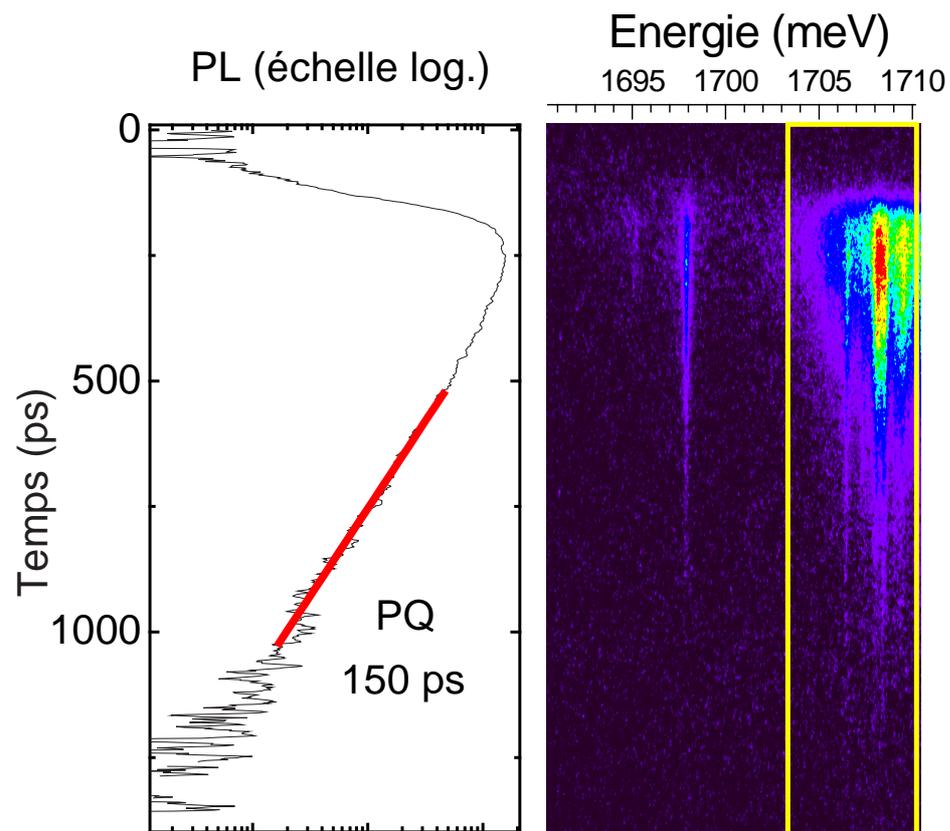


FIG. 3.3 – Analyse temporelle d’une image obtenue à la caméra à balayage de fente sur l’échantillon à petites boîtes quantiques. Le profil temporel de l’intensité du puits quantique (PQ) intégrée spectralement sur la fenêtre spectrale matérialisée par un rectangle met en évidence un temps de déclin de 150 ps.

de comprendre comment, en excitation non-résonante, les nombreux processus interviennent : relaxation des porteurs, processus de création des excitons, recombinaison sous forme radiative ou non-radiative.

Le temps de déclin de l'émission du puits quantique vaut 150 ps . Ce temps est bien plus long que le temps de vie radiatif des états de vecteur d'onde nul dans le plan ($k_{xy} = 0$). Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, pour un puits quantique parfait, seule une fraction d'états excitoniques est radiante. Ainsi, si la population d'exciton est à l'équilibre thermique, le temps de déclin de la photoluminescence intégrée coïncide avec l'inverse du taux de recombinaison moyenné thermiquement sur ces états [68]. Cependant, il a été montré qu'en excitation non-résonante, le temps de déclin peut être limité par la formation des excitons [69]. De plus, la température des excitons dans le puits quantique peut être différente de la température du réseau. Enfin, les fluctuations d'alliage dans les barrières conduisent à une faible localisation du centre de masse de l'exciton bidimensionnel. Comme nous l'avons vu au chapitre 1 pour les fluctuations d'épaisseur, le potentiel engendré par ces inhomogénéités a pour effet de mélanger les états d'exciton à petits vecteur d'onde dans le plan (les états radiants) et les états à grand vecteur d'onde dans le plan (les états non-radiants). Il a été montré que, dans certaines conditions, des temps de déclin dépendant inversement de la densité d'états localisés sont observés [68].

L'ensemble de ces études montre que le temps de déclin de la photoluminescence du puits quantique est bien plus long que le temps de vie radiatif de l'état $k_{xy} = 0$ [66]. De plus, il est d'autant plus long que le puits quantique est lisse et homogène, c'est-à-dire se rapproche du puits quantique parfait. La section suivante est consacrée à l'étude de la dynamique des états localisés dans les boîtes quantiques dans l'échantillon à petites boîtes quantiques.

3.2 Mise en évidence de la corrélation entre force d'oscillateur et taille de boîtes quantiques

Le calcul théorique [56] ayant motivé l'étude de ces boîtes quantiques prévoit une dépendance de la force d'oscillateur en fonction de la taille des boîtes quantiques, comme nous l'avons vu au chapitre 1. La démonstration expérimentale d'une telle dépendance est l'objet de ce paragraphe.

3.2.1 Mesure des temps de vie radiatifs

La figure 3.4 présente l'image obtenue à la caméra sur l'échantillon à petites boîtes quantiques, sur le microdisque contenant la boîte quantique QD1, à 4 K. Le spectre intégré temporellement et le profil temporel de l'émission de la raie discrète X sont reportés sur la figure 3.4. Nous mesurons un temps de déclin de l'émission de l'exciton de 110 ps .

En supposant que le puits quantique (QW pour quantum well) alimente la boîte quantique avec un temps caractéristique t_{rel} , et où le temps de vie de l'exciton (incluant les processus radiatifs et non-radiatifs) est t_x , la dynamique du système peut, dans une approche très grossière, être décrite

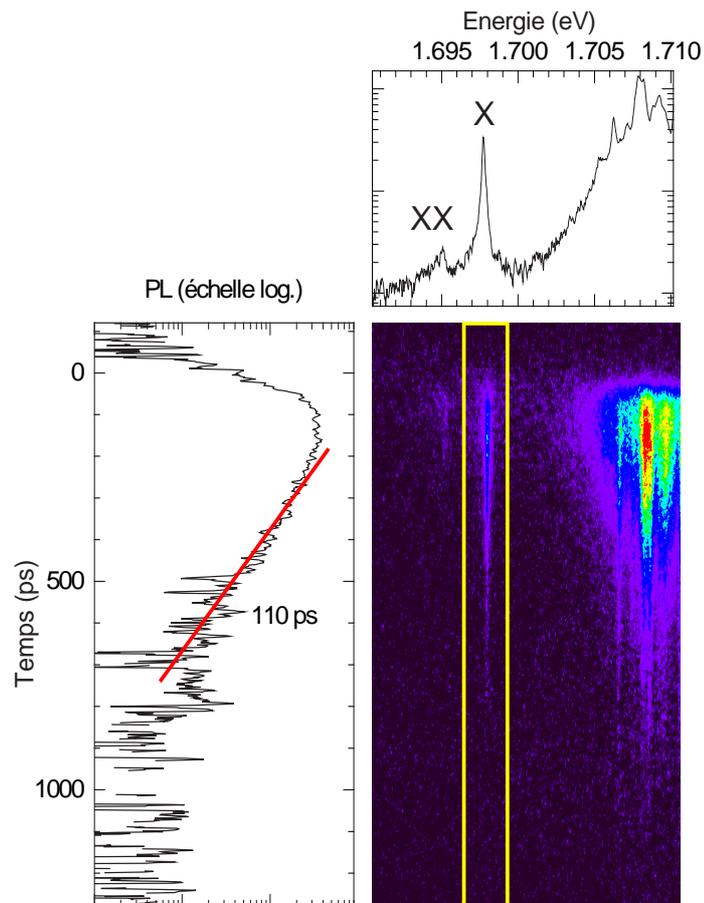


FIG. 3.4 – Image obtenue à la caméra à balayage de fente sur l'échantillon à petites boîtes quantiques à 4 K, sur le microdisque contenant la boîte quantique nommée QD1. A gauche : Profil temporel de l'émission de l'exciton X de la boîte QD1, intégré spectralement sur la fenêtre spectrale matérialisée par un rectangle. En haut : spectre intégré temporellement sur la fenêtre temporelle entière.

par les 2 équations de taux suivantes :

$$\frac{dn_{QW}}{dt} = -\frac{n_{QW}}{t_{rel}} \quad (3.1)$$

$$\frac{dn_x}{dt} = -\frac{n_x}{t_x} + \frac{n_{QW}}{t_{rel}} \quad (3.2)$$

ce qui conduit à l'intensité d'émission pour l'exciton $I_X(t)$ proportionnelle à :

$$\frac{t_x t_{rel}}{t_x - t_{rel}} \left(e^{-\frac{t}{t_x}} - e^{-\frac{t}{t_{rel}}} \right) \quad (3.3)$$

En conséquence :

- Si $t_x \gg t_{rel}$, le temps de déclin de la luminescence est le temps de vie radiatif de l'exciton ;
- Si $t_x \ll t_{rel}$, le temps de déclin est le temps de relaxation des porteurs, plus long dans cette hypothèse que le temps de vie radiatif excitonique.

Durant la thèse de J. Hours, il avait été montré que $t_{rel} \ll t_x$ pour les boîtes quantiques de l'échantillon à petites boîtes quantiques. De plus, en comparant le signal à saturation à celui des excitons de boîtes quantiques d'InAs, il avait été montré que les processus non-radiatifs étaient négligeables. Ainsi, le temps de déclin mesuré sur la figure 3.4 est le temps de vie radiatif de l'exciton, soit $t_x = 110 ps$. Nous montrons par la suite, que le modèle simple décrit ci-dessus ne peut suffire à décrire la dynamique d'émission des plus grandes boîtes quantiques de GaAs. Cependant, comme nous le verrons, cette première approche suffit pour décrire la dynamique d'émission des petites boîtes quantiques et en déduire la corrélation entre les temps de vie radiatifs et la taille des boîtes quantiques.

En mesurant le temps de vie radiatif sur plusieurs boîtes quantiques de l'échantillon à petites boîtes quantiques, nous avons constaté des variations de boîte quantique à boîte quantique, de 100 à 220 ps. Pour comprendre l'origine de cette variation du temps de vie radiatif excitonique, nous avons complété ces mesures par des mesures d'excitation de la photoluminescence sur boîte quantique unique. La figure 3.5 montre des mesures de photoluminescence et d'excitation de la photoluminescence pour 2 boîtes quantiques différentes. Le profil d'absorption en marche d'escalier reflète la densité d'états 2D du puits quantique. La différence d'énergie entre la raie discrète et le front d'absorption définit ce que nous appellerons par la suite l'énergie de liaison E_l de l'exciton. Cette énergie de liaison résulte à la fois de l'interaction coulombienne et du confinement. Elle vaut $E_l = 12 meV$ pour la boîte quantique QD_1 et $E_l = 3.7 meV$ pour la boîte quantique QD_2 . Le confinement de l'exciton de la boîte quantique est relié à la largeur du puits de potentiel, donc à la taille de la boîte quantique. Plus la boîte quantique est large, plus le niveau d'énergie se trouve dans le fond du puits quantique, et plus l'énergie de liaison est grande. Pour chaque exciton étudié, nous relevons son énergie d'émission en μ -PL, sa distance au continuum E_l en μ -PLE et le temps de déclin excitonique mesuré à la caméra à balayage de fente. L'ensemble de ces mesures est synthétisé sur la courbe 3.6, représentant le temps de vie radiatif en fonction de l'énergie de liaison E_l . Pour les petites énergies de liaison, donc les petites boîtes quantiques, le temps de vie radiatif est minimum (100 ps). Il augmente et atteint un maximum pour une énergie de liaison de 4-5 meV. Puis il re-diminue pour les plus grandes boîtes quantiques (les plus grandes énergies de liaison) pour atteindre à nouveau 100 ps pour les plus grandes boîtes quantiques de cet échantillon.

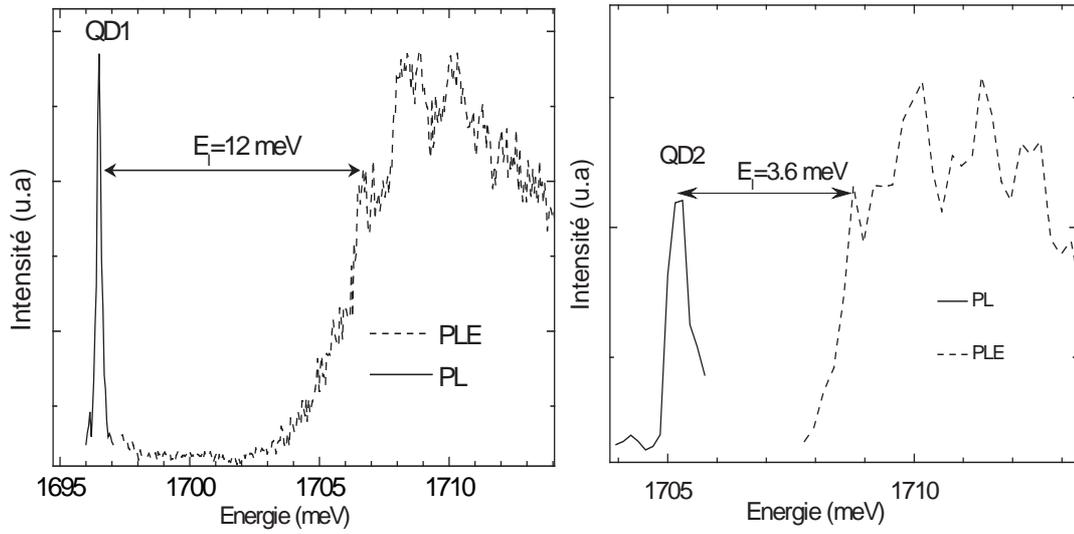


FIG. 3.5 – Spectres de μ -PL (traits pleins) et μ -PLE (pointillés) de l'exciton des boîtes quantiques QD1 et QD2. La distance au continuum définit l'énergie de liaison de l'exciton confiné, notée E_l .

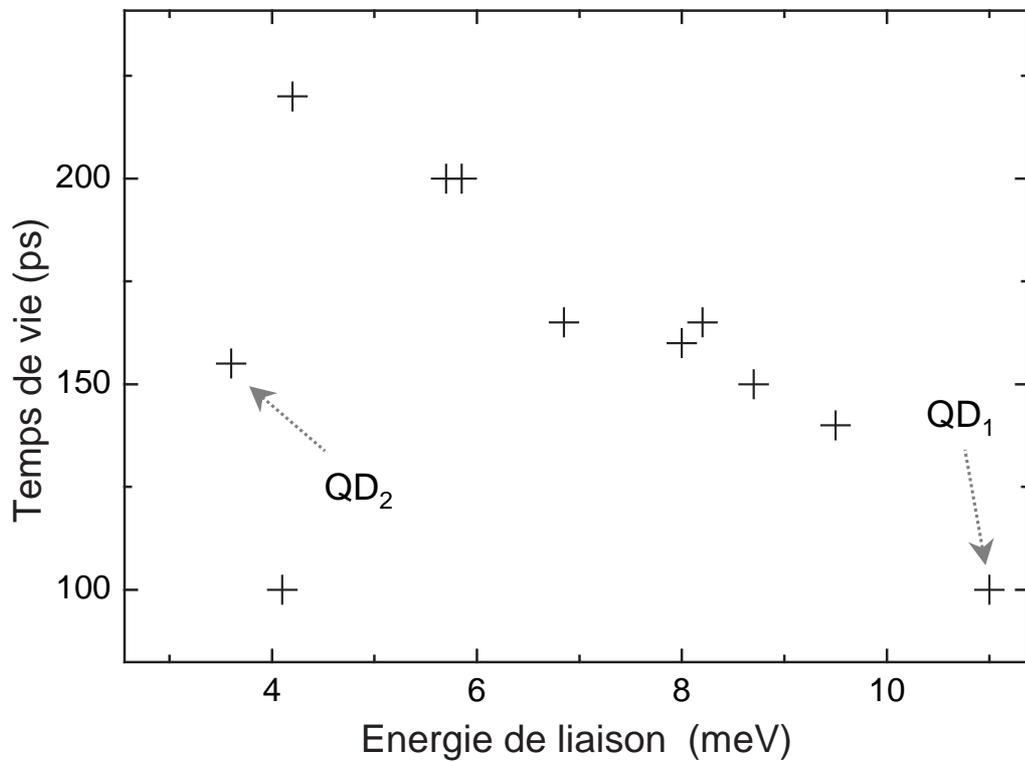


FIG. 3.6 – Mesure du temps de vie en fonction de l'énergie de liaison déduite des mesures de PLE.

3.2.2 Lien entre le temps de vie radiatif et la taille latérale de la boîte quantique

Afin de relier l'énergie de liaison à la taille de la boîte quantique, nous utilisons une approche variationnelle, basée sur les hypothèses développées dans le chapitre 1 : l'attraction coulombienne électron-trou étant plus forte que le potentiel latéral de confinement, on considère un exciton quasi-2D dont le centre de masse est faiblement localisé par une fluctuation d'une monocouche. Cette monocouche supplémentaire crée un puits de potentiel de profondeur V_b . Ne connaissant pas la forme précise du potentiel, nous traitons le problème pour un puits de potentiel cylindrique et pour un puits gaussien.

Puits cylindrique La fonction d'onde de l'exciton, établie au chapitre 1, est :

$$\psi_X(r_e, r_h) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\xi} e^{-\frac{R_{xy}}{2\xi^2}} \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{-\rho/\lambda} \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \quad (3.4)$$

ξ est un paramètre variationnel décrivant l'extension du mouvement du centre de masse. Nous cherchons alors à résoudre le problème variationnel pour trouver la valeur du paramètre ξ qui donne l'énergie de liaison mesurée en PLE. L'énergie de liaison moyenne de l'exciton est donnée par :

$$\langle \Psi | E_l | \Psi \rangle = \langle E_c \rangle + \langle V_b \rangle = \frac{\hbar^2}{2m\xi^2} + V_b (e^{-\frac{r^2}{\xi^2}} - 1) \quad (3.5)$$

où $\langle E_c \rangle$ désigne l'énergie cinétique moyenne et $\langle V_b \rangle$ le potentiel moyen. L'approche variationnelle consiste à chercher la valeur du paramètre ξ qui minimise l'énergie E_l . On obtient alors une relation entre ξ et r :

$$\frac{dE_l}{d\xi} = 0 \Leftrightarrow \xi^2 = \frac{r^2}{Ln\left(\frac{2mr^2V_b}{\hbar^2}\right)} \quad (3.6)$$

avec la condition : $r^2 > \frac{\hbar^2}{2mV_b}$. Cette condition signifie que pour un rayon inférieur à $r_{limite} = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2mV_b}}$, il n'y a aucun état lié dans le puits quantique.

L'énergie de liaison moyenne de l'exciton se ré-écrit alors en fonction du rayon de la boîte quantique :

$$\langle \Psi | E_l | \Psi \rangle = \frac{\hbar^2}{2mr^2} \left(1 + \ln \frac{r^2}{r_{limite}^2}\right) - V_b \quad (3.7)$$

Puits gaussien On considère maintenant que la fluctuation d'épaisseur crée un puits de potentiel gaussien de profondeur V_b : $V = -V_b e^{-R_{xy}^2/r^2}$ où r est le rayon de la boîte quantique. Le potentiel moyen alors vaut $V_b \frac{r^2}{r^2 + \xi^2}$. La minimisation de l'énergie conduit à l'expression de ξ en fonction de r :

$$\xi^2(r) = \frac{r^2}{\sqrt{\frac{2mV_b r^2}{\hbar^2} - 1}} = \frac{r^2}{\sqrt{\frac{r^2}{r_{limite}^2} - 1}} \quad (3.8)$$

L'énergie de liaison moyenne de l'exciton se ré-écrit alors en fonction de r :

$$\langle \Psi | E_l | \Psi \rangle = \frac{\hbar^2}{2m\xi(r)^2} - V_b \frac{r^2}{r^2 + \xi^2(r)} \quad (3.9)$$

La profondeur V_b du puits quantique est déduite des mesures de photoluminescence : elle correspond à la différence d'énergie entre le puits quantique d'épaisseur N et le puits quantique d'épaisseur $N + 1$ (voir le chapitre 2). Pour les boîtes quantiques considérées, on mesure $V_b =$

17 meV. Connaissant V_b , on déduit des formules 3.7 et 3.9 le rayon de la boîte quantique auquel correspond l'énergie de liaison mesuré en PLE. La figure 3.7 donne l'énergie de liaison en fonction du rayon de la boîte quantique pour les 2 formes de puits de potentiel. Comme on peut le voir sur la figure 3.7, une énergie de liaison donnée correspond à un rayon de boîte quantique plus grand pour le puits de potentiel gaussien que pour le potentiel cylindrique.

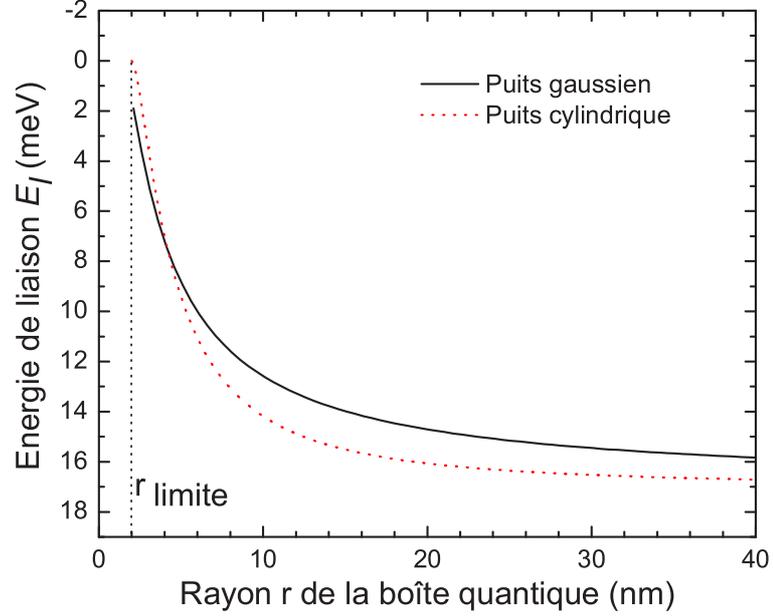


FIG. 3.7 – Calcul de l'énergie de liaison E_l en fonction du rayon r de la boîte quantique pour $r > r_{limite}$ représenté par les pointillés pour $V_b = 17$ meV pour un puits de potentiel gaussien (trait plein) et cylindrique (pointillés).

Enfin, le temps de vie radiatif est relié à la force d'oscillateur par :

$$f = \frac{1}{t_x} \frac{1}{\omega^2} \frac{3\pi\epsilon_0 2mc^3}{ne^2} \quad (3.10)$$

La figure 3.8 donne les valeurs des forces d'oscillateur correspondant à des temps de vie radiatifs variant de 10 ps à 1000 ps, pour une énergie d'émission $\hbar\omega = 1.7$ eV.

Nous pouvons alors tracer la force d'oscillateur en fonction de la taille de boîte quantique déduite. La figure 3.9 représente la dépendance théorique déjà discutée dans le chapitre 1, ainsi que les forces d'oscillateur déduites des mesures en fonction des tailles calculées pour les 2 formes de potentiel. Comme attendu théoriquement, nous observons une dépendance en U de la force d'oscillateur avec la taille de la boîte quantique. La comparaison des figures 3.9b et 3.9c montre que la taille déduite est très dépendante de la forme précise du potentiel. Dans le cas du puits de potentiel cylindrique, ce minimum de force d'oscillateur est atteint pour un rayon de boîte quantique de 3 nm ; dans le cas du puits gaussien, il est atteint pour un rayon de 6 nm, donc de l'ordre du rayon de Bohr de l'exciton 2D. Le modèle du puits gaussien semble donc plus adapté dans ce cas ; comme les interfaces ne sont pas abruptes, une forme gaussienne de potentiel est probablement plus réaliste pour les petites boîtes quantiques. Il reste toutefois une contraction des abscisses d'un facteur 2 par rapport au calcul de la référence [56]. Etant donnée l'extrême sensibilité des tailles déduites à la forme précise du potentiel, nous ne cherchons pas d'autre raison à ce désaccord.

Nous constatons également un désaccord d'un facteur 2 sur l'ordonnée : alors que le modèle prévoit

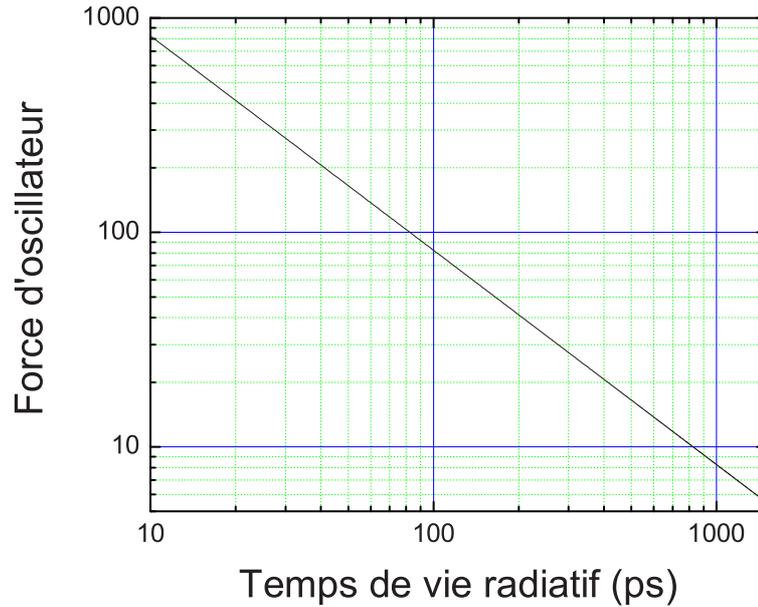


FIG. 3.8 – Force d'oscillateur calculée pour des temps de vie radiatifs variant de 10 à 1000 ps pour une énergie d'émission $\hbar\omega \sim 1.7 \text{ eV}$.

une force d'oscillateur minimale de 60, nous mesurons des forces d'oscillateur minimales de 30. Des mesures de dynamique de la polarisation dans des boîtes quantiques à fluctuation d'interface [36] ont montré que la diffusion entre états sombres et états clairs pourrait être très efficace. Rappelons que la formation d'un exciton, à partir d'un électron de spin $\pm\frac{1}{2}$ et d'un trou lourd de spin $\pm\frac{3}{2}$ donne lieu à 4 états quantiques : 2 de spin total ± 2 , donc non couplés à la lumière par un opérateur à un photon, dits états sombres, et 2 états de spin total ± 1 , qui peuvent se désexciter par émission de photons de spin ∓ 1 , dits états brillants. Par conséquent, si les excitons piégés dans la boîte quantique, créés en excitation non-résonante sont un mélange statistique mi-sombre/mi-brillant, le temps de déclin observé correspond alors à la recombinaison radiative d'une population d'excitons brillants à 50 % seulement, soit un temps 2 fois plus long que le temps de vie radiatif de l'exciton brillant.

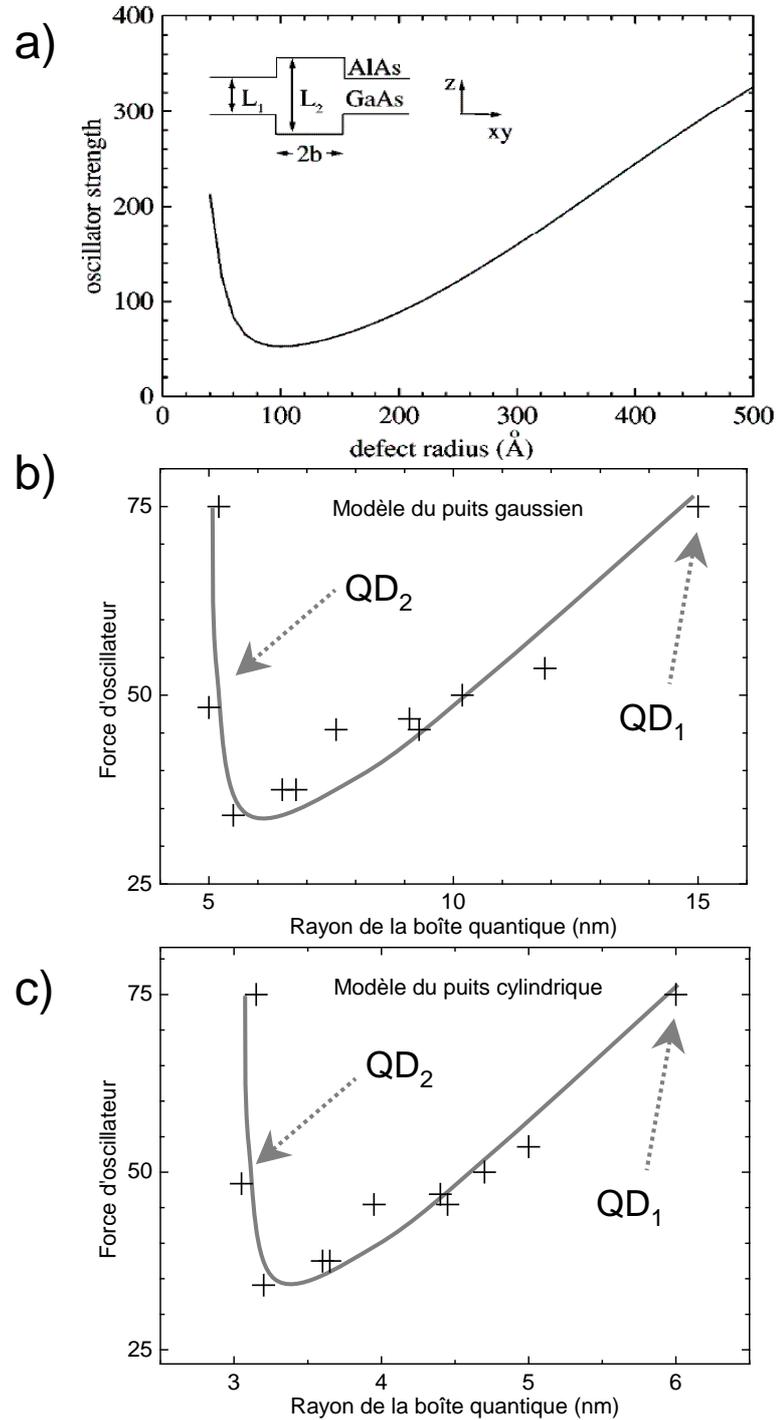


FIG. 3.9 – Force d'oscillateur en fonction du rayon de la boîte quantique. a-Dépendance théorique [56]. b-Mesures en fonction du rayon r déduit dans l'hypothèse où la fluctuation d'épaisseur crée un puits de potentiel gaussien $V = -V_b e^{-R_{xy}^2/r^2}$. c-Mesures en fonction du rayon r déduit dans l'hypothèse où la fluctuation d'épaisseur crée un puits de potentiel cylindrique de profondeur V_b et de rayon égal au rayon r de la boîte quantique. La courbe grise sur les figures b et c est un guide pour les yeux.

En conclusion, nous avons fait la démonstration expérimentale de la dépendance de la force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs en fonction de leur taille latérale. La dépendance observée est celle attendue théoriquement, avec une force d'oscillateur minimale pour des tailles de boîtes quantiques de l'ordre du rayon de Bohr de l'exciton 2D. Cette force d'oscillateur minimale est de 30 (60 si l'on considère les états sombres dans l'hypothèse développée au paragraphe précédent), ce qui correspond à un temps de vie radiatif maximal de 220 *ps* (resp. 110). Nous avons confirmé que les plus grandes boîtes quantiques présentent des forces d'oscillateur croissant avec la taille de la boîte quantique. Sur l'échantillon à petites boîtes quantiques sur lequel cette étude a été menée, la taille maximale des boîtes quantiques est de l'ordre de 20-30 *nm*. Pour aller plus loin et bénéficier pleinement de cet effet, les conditions de croissance permettant d'obtenir des grandes boîtes quantiques ont été développées, comme nous l'avons vu au chapitre 2. Nous présentons dans la section 3.4 les mesures résolues en temps sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques. Cependant, avant d'entreprendre cette étude, nous présentons dans la section 3.3 une étude en puissance sur la boîte quantique QD_1 .

3.3 Mise en évidence de la cascade radiative

Dans cette partie, nous mettons en évidence par les expériences de μ -PL résolue en temps la cascade radiative biexciton-exciton, habituellement démontrée dans des expériences de corrélations [70, 71]. Nous nous intéresserons également à la dépendance en puissance de l'intensité intégrée de l'exciton et du biexciton. Cette étude montrera la nécessité d'établir un modèle prenant en compte le temps de capture des paires électron-trou dans la boîte quantique.

3.3.1 Evolution de la dynamique d'émission avec la puissance d'excitation

La figure 3.10 représente les images obtenues à 4 K sur le microdisque contenant la boîte quantique QD_1 , à 3 puissances d'excitation différentes : $P_0 = 320 \text{ nW}$, $2P_0$ et $5P_0$.

L'image à plus faible puissance correspond à celle que nous avons étudiée au paragraphe précédent. Nous nous intéressons à l'évolution de l'émission des 2 raies discrètes X et XX , respectivement à 1697.7 meV et à 1695 meV . A basse puissance, la raie X domine le spectre. Quand on augmente la puissance, la raie XX apparaît vers 1695 meV . Cette raie est associée à la transition fondamentale de la boîte quantique mais avec deux excitons dans la boîte quantique, le biexciton, comme nous l'avons vu au chapitre 2. L'identification de la raie biexcitonique est confirmée par la dépendance quadratique de son intensité en fonction de la puissance, comme nous le verrons dans le prochain paragraphe. Remarquons par ailleurs que pour les spectres obtenus pour les puissances $2P_0$ et $5P_0$, la raie d'émission du biexciton n'est plus lorentzienne mais développe une aile à basse énergie. Nous étudierons la forme de raie du biexciton en détails au chapitre 4.

La figure 3.11 représente les profils temporels d'émission de l'exciton et du biexciton. Aux temps longs, les temps de déclin de l'émission de l'exciton et du biexciton sont mono-exponentiels, et valent respectivement $t_x = 110 \text{ ps}$ et $t_{xx} = 60 \text{ ps}$. Comme on peut le voir sur cette figure, quand le biexciton apparaît, l'émission de l'exciton est retardée. Le retard croissant de l'émission de l'exciton avec la puissance est la signature de l'émission séquentielle biexciton/exciton.

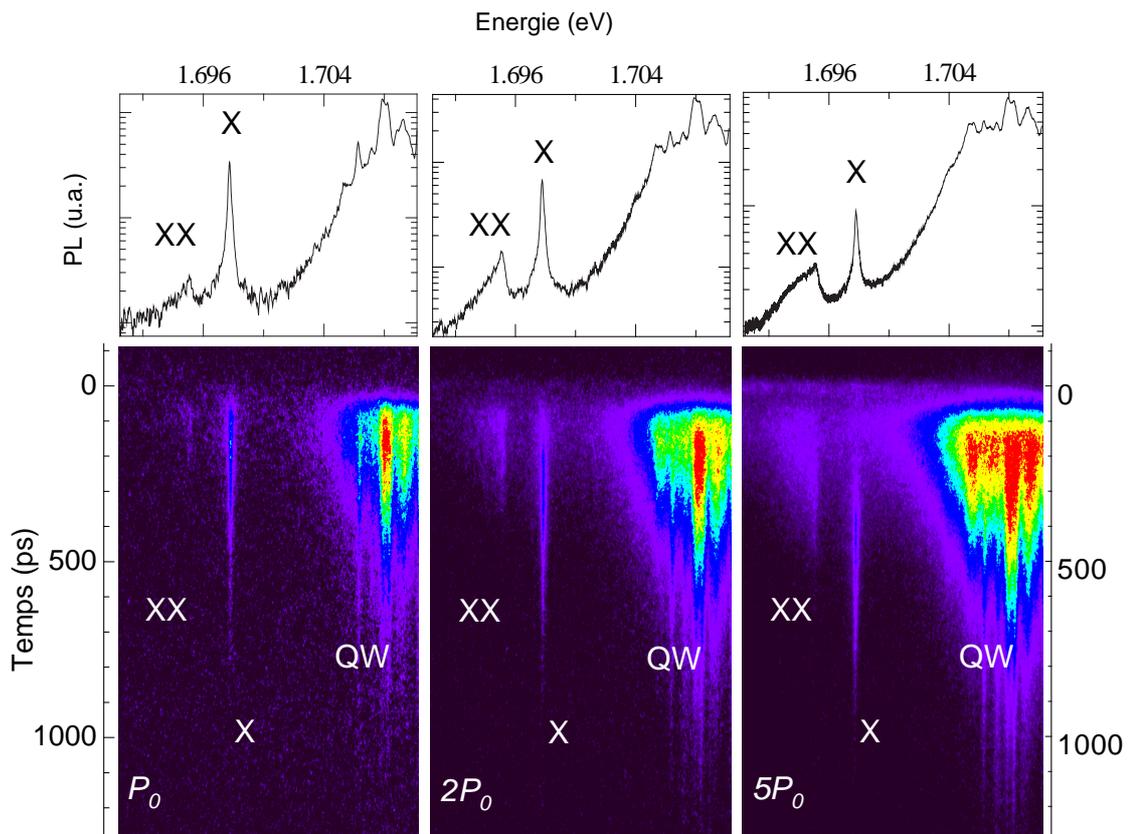


FIG. 3.10 – Images obtenues à la caméra à 4 K sur le microdisque contenant la boîte quantique QD1 pour 3 puissances d'excitations : $P_0 = 320nW$, $2P_0$ et $5P_0$. Au-dessus de chaque image figure le spectre en échelle logarithmique intégré sur la fenêtre temporelle entière.

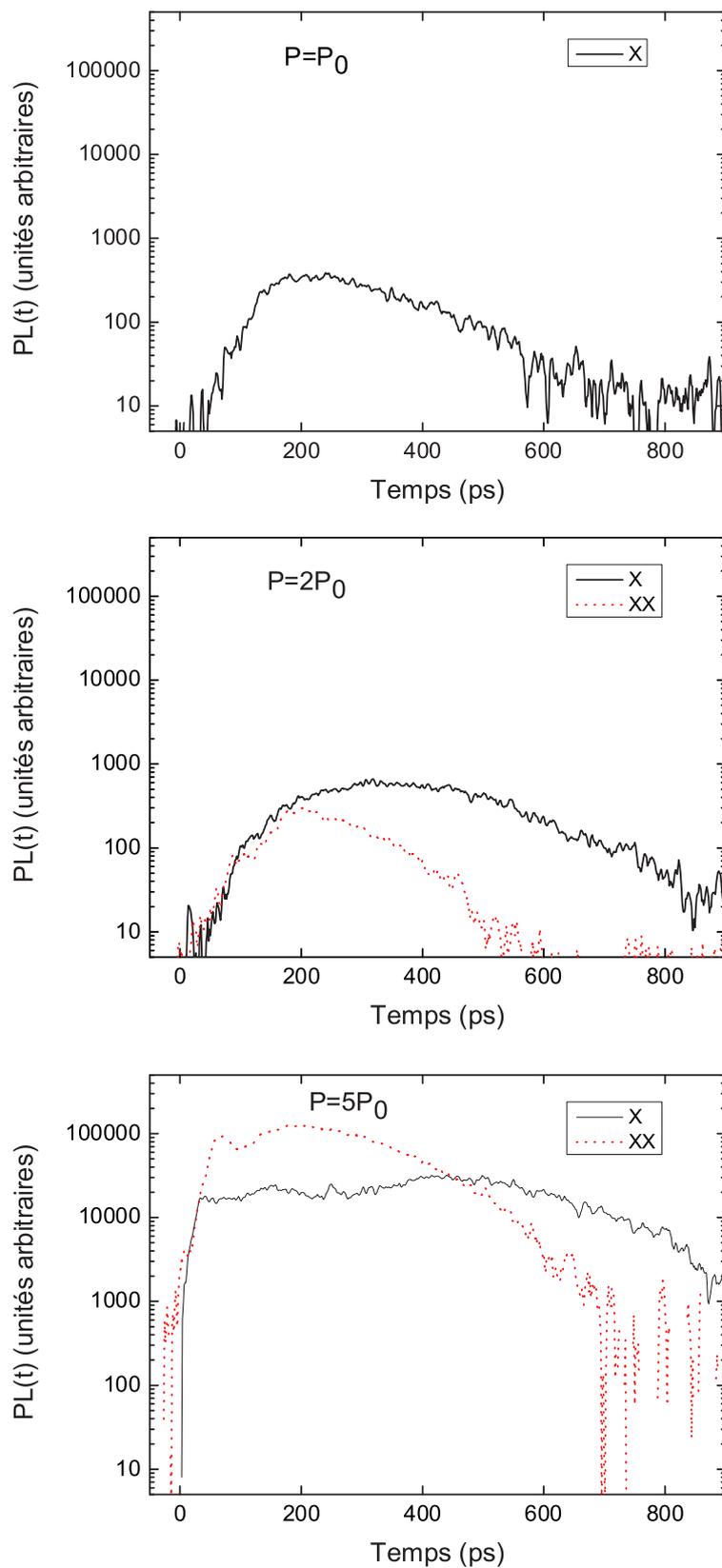


FIG. 3.11 – Profils temporels de l'émission de l'exciton et du biexciton de la boîte quantique QD_1 à 4 K pour différents puissances d'excitation en échelle logarithmique. La même échelle d'intensité du signal de PL est utilisée en ordonnée pour les 3 graphes.

3.3.2 Mise en évidence de la re-capture du biexciton

L'observation de la cascade radiative confirme l'identification des raies réalisée en excitation continue au chapitre 2, où, à faible puissance d'excitation, la raie X est linéaire et la raie XX est quadratique avec la puissance. Nous reportons sur la figure 3.12 l'intensité intégrée spectralement et temporellement pour l'exciton et pour le biexciton incluant son aile basse énergie en fonction de la puissance, sous excitation pulsée. Ces mesures sont effectuées à plus forte puissance d'excitation qu'en excitation continue, de sorte que les régimes linéaire (pour l'exciton) et quadratique (pour le biexciton) ne sont visibles que sur les 2 premiers points.

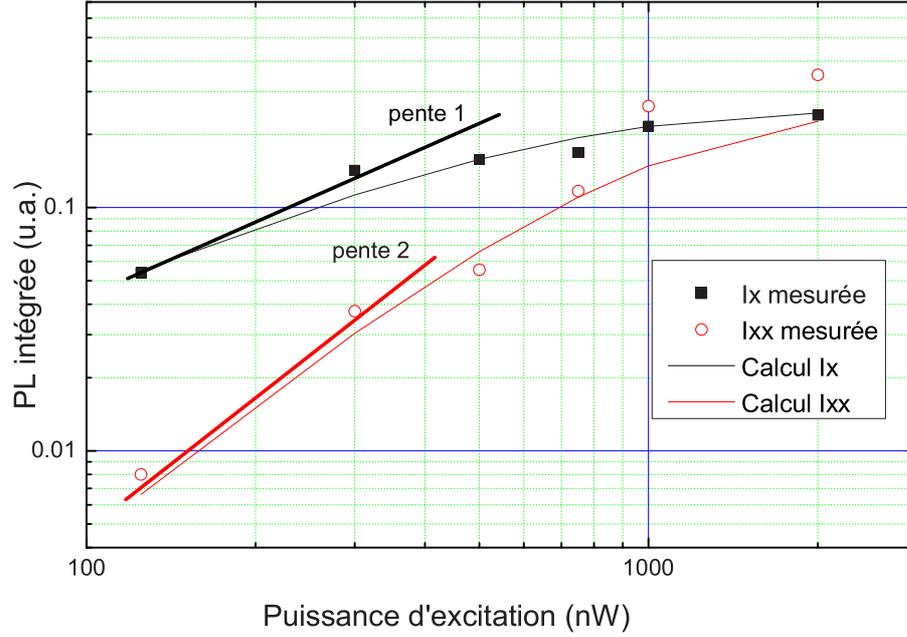


FIG. 3.12 – Intensité de l'exciton (symboles carrés) et du biexciton (symboles ronds) de la boîte quantique QD1 à 4 K en fonction de la puissance d'excitation. Les traits pleins correspondent au calcul basé sur un modèle sans ré-alimentation (équations 3.13 et 3.15).

Il est important de remarquer que, pour des puissances d'excitation supérieures à $1 \mu W$, l'intensité du biexciton devient supérieure à celle de l'exciton. Ceci est contraire à ce qui est normalement attendu pour une boîte quantique sous excitation impulsionnelle. En effet, l'émission d'un exciton (resp. biexciton) est proportionnelle à la probabilité d'injecter au moins une paire électron-trou (resp. 2 paires). Si l'on considère des puissances d'excitation suffisamment grandes, ces 2 probabilités tendent vers 1. Le modèle couramment utilisé décrivant ce phénomène repose sur les hypothèses suivantes :

- Le processus de capture est indépendant du nombre de porteurs présents dans la boîte.
- La capture instantanée a lieu uniquement à $t = 0$. Tout phénomène de recapture est négligé.
- L'injection des paires électron-trou dans la boîte quantique est poissonnienne.

Sous ces hypothèses, la probabilité $P(n)$ d'avoir n excitons dans la boîte quantique suit une distribution poissonnienne :

$$p(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} = \frac{1}{n!} \left(\frac{P}{P_{sat}} \right)^n e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (3.11)$$

où $\langle n \rangle$ est le nombre de paires électrons-trous créées par impulsions, dépendant linéairement de la puissance incidente P . Il s'ensuit que :

- La probabilité d'injecter au moins une paire électron-trou vaut :

$$n_x = 1 - p(0) = 1 - e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (3.12)$$

de sorte que l'intensité I_x de la raie excitonique X , proportionnelle à n_x , vaut :

$$I_x = I_0(1 - p(0)) \quad (3.13)$$

où I_0 caractérise l'efficacité de collection de l'expérience.

- La probabilité d'injecter au moins deux paires électron-trou vaut :

$$n_{xx} = 1 - p(0) - p(1) = 1 - e^{-\frac{P}{P_{sat}}} - \frac{P}{P_{sat}} e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (3.14)$$

L'intensité I_{xx} de la raie biexcitonique XX vaut

$$I_{xx} = I_0(1 - p(0) - p(1)) \quad (3.15)$$

Calculons maintenant les intensités d'émission à l'aide des équations 3.13 et 3.15, en ajustant le coefficient de proportionnalité I_0 aux données expérimentales. Sur la figure 3.12, ces calculs correspondent aux traits pleins. On obtient un très bon accord pour l'exciton. Pour le biexciton, l'accord est bon à basse puissance seulement. A forte puissance, l'intensité mesurée pour le biexciton est supérieure à celle prévue par ce modèle. Le modèle développé n'est valide qu'en l'absence de processus de recapture au sein de la boîte quantique. Or, le temps de vie du biexciton (60 ps) étant inférieur à celui du puits quantique (150 ps), après l'émission d'un biexciton, la probabilité qu'il reste des paires électrons-trous dans le puits quantique est non-nulle. La boîte quantique peut donc à nouveau capturer une paire électron-trou et émettre un autre biexciton, ce, jusqu'à ce que le puits quantique soit vide. Nous attribuons la différence de signal entre les mesures et le calcul basé sur l'équation 3.15 à cette ré-alimentation du biexciton. Le nombre total de photons émis par impulsion dépend alors des temps de vie radiatifs de l'exciton, du biexciton, du puits quantique et du temps de capture fini : il y a compétition entre la recombinaison des paires électron-trou dans le puits quantique et leur capture dans la boîte quantique suivie de recombinaison radiative. Nous développons dans la partie 3.5 un modèle plus complet prenant en compte ces différents phénomènes.

3.4 Dynamique d'émission des grandes boîtes quantiques sous excitation non-résonante

Dans cette partie, nous étudions le comportement dynamique des boîtes quantiques plus grandes. Comme les propriétés de couplage à la lumière sont gouvernées par les tailles des boîtes quantiques, nous nous attendons à observer des propriétés radiatives différentes. Nous allons voir en effet que les profils temporels des excitons ont des temps de déclin plus longs (300-400 ps) que le temps de vie radiatif maximal des boîtes quantiques naturelles de GaAs. D'autre part, nous n'observons pas de cascade radiative dans cet échantillon. Pour comprendre la dynamique des excitons dans les boîtes quantiques à grande force d'oscillateur, l'analyse des profils temporels établie pour les boîtes quantiques à faible force d'oscillateur doit être entièrement revue.

3.4.1 Temps de déclin de l'émission excitonique dans les grandes boîtes quantiques

Considérons pour commencer la figure 3.13, présentant des images obtenues à la caméra à balayage de fente pour des puissances d'excitation croissantes : 500 nW , $1 \mu\text{W}$ et $10 \mu\text{W}$.

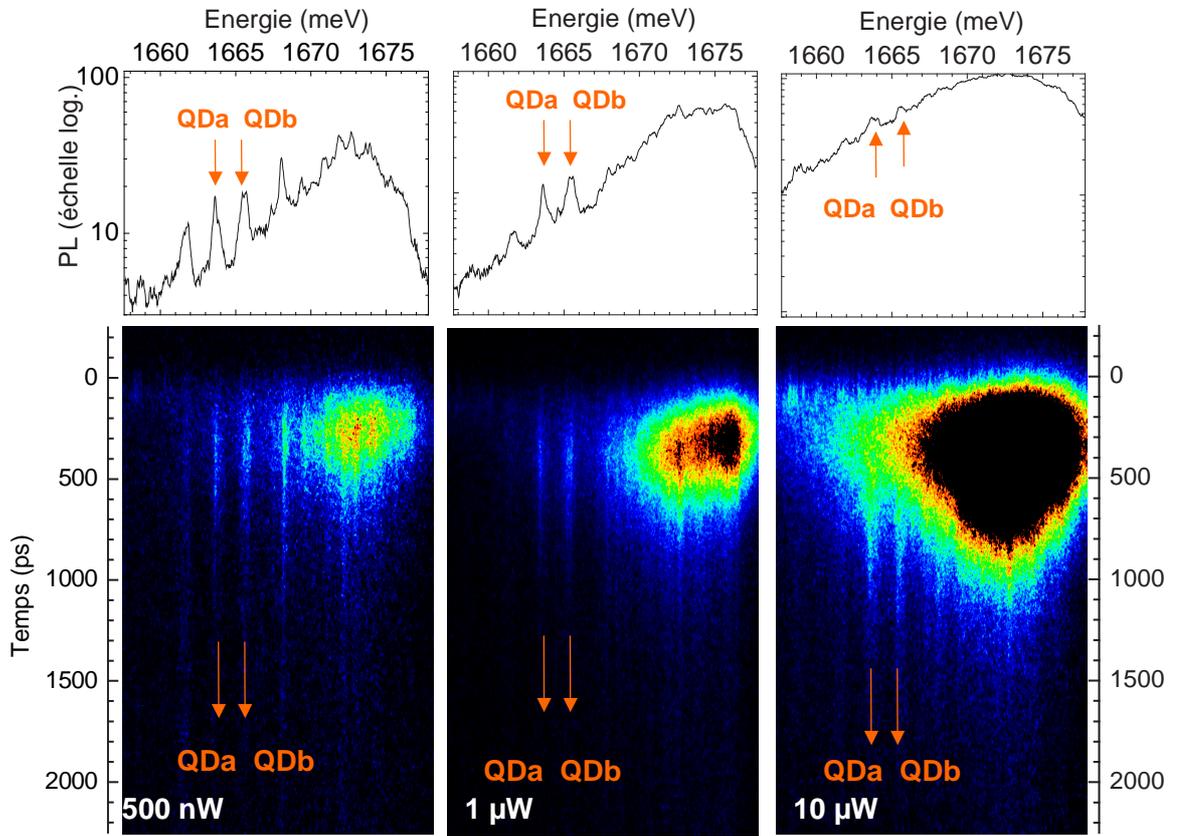


FIG. 3.13 – Images obtenues à la caméra à balayage de fente sur le second échantillon pour 3 puissances d'excitation : $P_1 = 500 \text{ nW}$, $2P_1$ et $20P_1$. On distingue en particulier 2 raies discrètes que nous appelons QDa et QDb. En haut : spectres intégrés sur toute la fenêtre temporelle en échelle logarithmique.

Contrairement à ce que nous observions précédemment sur les petites boîtes quantiques, aucune raie biexcitonique n'apparaît aux fortes puissances sur la figure 3.13. Nous en concluons, d'après la formule 3.15, que la probabilité de présence de 2 paires électron-trou dans la boîte quantique est négligeable.

La figure 3.14 montre l'intensité intégrée en fonction de la puissance pour la raie excitonique de la boîte quantique *QDa*. Dans les gammes de puissances atteintes expérimentalement, l'intensité intégrée de l'exciton est constamment linéaire. Cela confirme que la probabilité d'avoir plus d'une paire électron-trou dans la boîte quantique est négligeable et signifie que la puissance d'excitation est toujours très inférieure à la puissance de saturation.

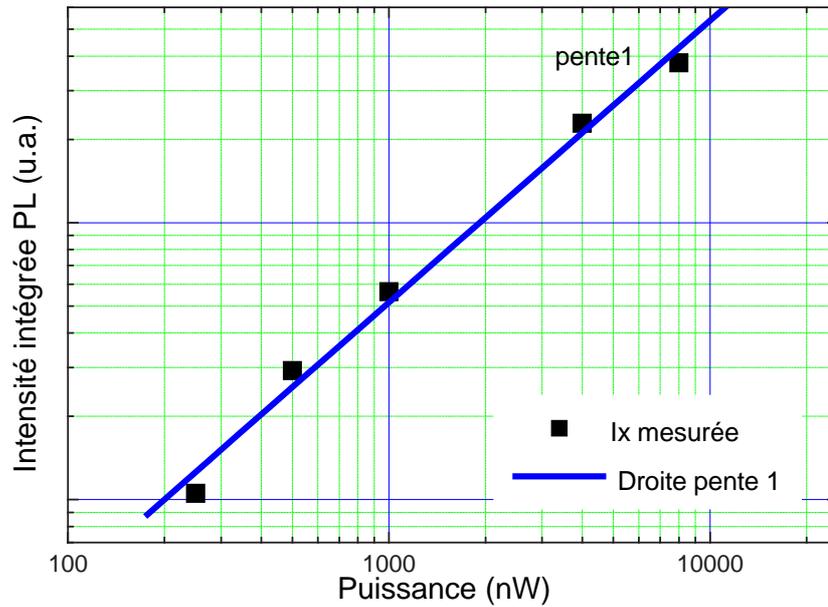


FIG. 3.14 – Intensité intégrée à 4 K de l'exciton de la boîte quantique *QDa* (symboles carrés) en fonction de la puissance d'excitation sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques et ajustement linéaire par une droite de pente 1 (trait).

Comme les puissances d'excitation sont identiques à celles utilisées sur l'échantillon précédent, on en déduit que, dans cet échantillon, la puissance de saturation est bien plus élevée. B. Gayral avait montré dans sa thèse [47] que les puissances de saturation sont en rapport inverse des temps de vie radiatifs. Or, I_x est linéaire jusqu'à au moins $10 \mu W$, alors que sur l'échantillon précédent, I_x cessait d'être linéaire dès $500 nW$. Si l'on estime ainsi que la puissance de saturation est au moins 20 fois plus grande que sur l'échantillon précédent, le temps de vie radiatif serait au moins 20 fois plus court, soit inférieur à $5 ps$. Ce raisonnement est faux puisqu'il oublie le rôle du temps de capture, qui ne peut plus être considérée comme instantanée. Nous allons dans un prochain paragraphe modéliser l'émission de ces boîtes quantiques en incluant le temps de capture fini. Nous pouvons dès lors retenir que l'absence de raie biexcitonique, ainsi que la persistance du régime linéaire pour l'exciton montrent que la probabilité de présence de 2 paires électron-trou dans la boîte quantique est négligeable. Cela implique que le temps de vie radiatif t_x est court devant le temps de vie radiatif du puits quantique et le temps de capture. Dans cette hypothèse, la dynamique des grandes boîtes quantiques sous excitation impulsionnelle non-résonante peut être schématisée de la façon suivante. Considérons la figure 3.15 :

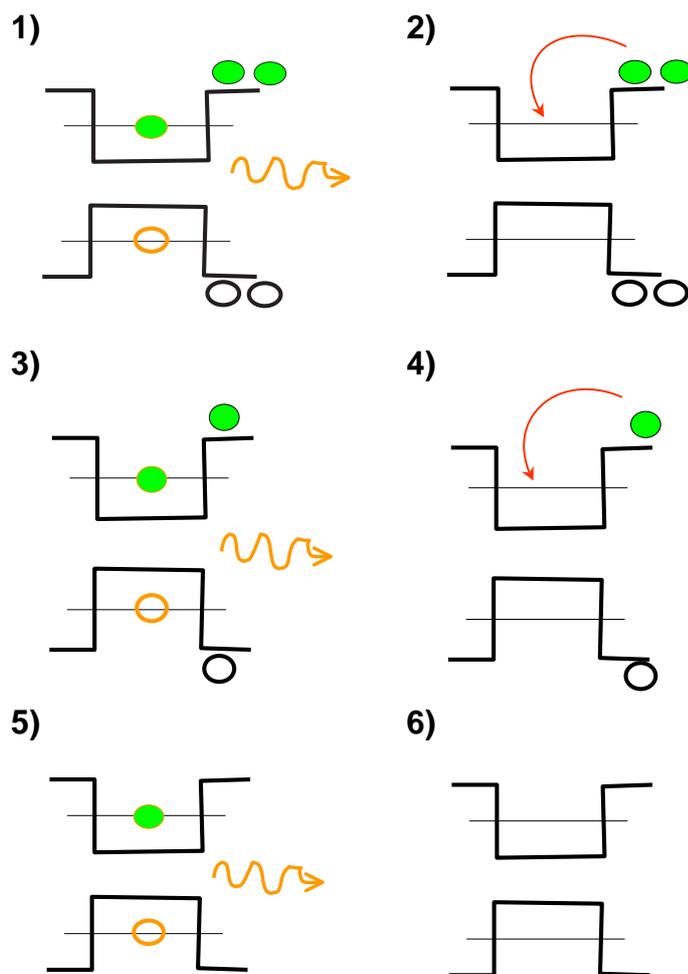


FIG. 3.15 – Schéma chronologique de la recombinaison des excitons de boîtes quantiques à temps de vie radiatif très court devant celui du puits quantique.

1. On suppose que la boîte quantique a capturé un premier exciton. Comme nous n'observons pas de biexciton, nous faisons l'hypothèse que le temps de capture est plus long que le temps de vie de l'exciton. La recombinaison radiative de l'exciton produit un photon. Comme le temps de vie de l'exciton est beaucoup plus court que celui du puits quantique, de nombreuses paires électron-trous sont encore présentes dans le puits quantique.
2. La boîte quantique peut alors capturer une 2ème paire électron-trou.
3. La recombinaison de cet exciton donne lieu à l'émission d'un second photon.
4. Après ces 2 captures et ces 2 recombinaisons, s'il reste encore des paires électron-trou dans le puits quantique, la boîte quantique peut encore capturer un exciton.
5. Puis elle émet un troisième photon dû à la recombinaison de cet exciton...*etc*
6. Le scénario s'arrête quand il ne reste plus de paires électron-trou dans le puits quantique. Le nombre total de photons émis dépend des temps de vie radiatifs de l'exciton et des paires électron-trou du puits quantique, ainsi que du temps de capture. Ce schéma permet de comprendre qualitativement que le temps de déclin de la luminescence de l'exciton n'est pas son temps de vie radiatif.

Les profils temporels de l'émission de l'exciton mesurés sur la boîte quantique QDa à 4 K, normalisés à la puissance d'excitation sont représentés sur la figure 3.16. Le temps de déclin de

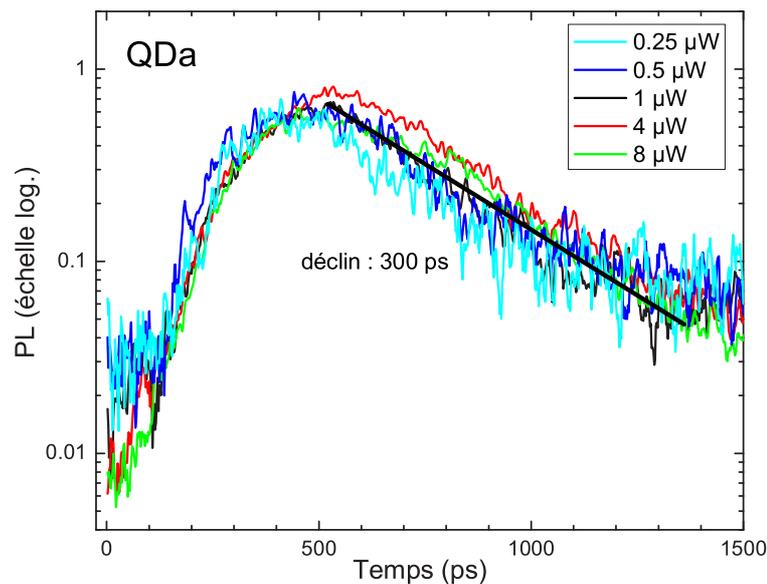


FIG. 3.16 – Profils temporels de la luminescence normalisée à la puissance de la raie discrète QDa pour différentes puissances d'excitation à 4 K.

l'émission excitonique est indépendante de la puissance et vaut 300 ps pour la boîte quantique QDa. Nous trouvons un temps de déclin identique pour l'exciton de la boîte quantique QDb. De nombreuses mesures semblables ont été effectuées; elles montrent toutes des temps de déclin plus longs que sur l'échantillon à petites boîtes quantiques, allant de 200 à 600 ps, avec une moyenne de 300 ps. Un temps de vie radiatif de 600 ps correspondrait à une force d'oscillateur $f \sim 13$, ce qui est très en-dessous du minimum de la courbe de force d'oscillateur en fonction de la taille de boîte quantique (rappelons que ce minimum expérimental était obtenu pour un temps de vie radiatif de 220 ps, soit $f = 30$). Ceci indique que nous ne sommes plus dans les conditions où le temps de

vie radiatif excitonique est le temps de déclin de la luminescence. Avec les notations du début de cette partie sur la dynamique, le temps de déclin correspond à ce que nous avons appelé temps de relaxation. Nous verrons plus loin ce qu'il recouvre exactement.

3.4.2 Synthèse

Nous avons constaté que la dynamique d'émission des boîtes quantiques sous excitation impulsionnelle est très différente dans les petites boîtes quantiques et dans les grandes boîtes quantiques.

- Dans les petites boîtes quantiques, on observe une recombinaison séquentielle du biexciton et de l'exciton pour les plus fortes puissances. Nous avons constaté que la recapture est responsable d'une intensité de saturation plus importante sur le biexciton que sur l'exciton. Le temps de capture ne peut plus être négligé, dès lors qu'il devient comparable aux temps de vie radiatifs.
- Dans les grandes boîtes quantiques, nous avons observé une dynamique d'émission très différente : l'intensité intégrée de l'exciton est linéaire sur toute la gamme de puissance observée. En termes imagés cela signifie que la boîte quantique se vide plus vite qu'on ne la remplit, mêmes aux plus fortes puissances d'excitation. Nous n'avons pas observé de raie biexcitonique ; on en conclut que la probabilité de mettre 2 excitons dans la boîte quantique est rendue négligeable par un temps de vie radiatif court devant le temps de capture.

3.5 Modélisation de la dynamique des boîtes quantiques de GaAs

Afin d'unifier les différentes observations sur les 2 échantillons, nous développons un modèle qui prend en compte la capture dans la boîte quantique à tout instant avec un temps de capture fini, ainsi que la recombinaison radiative du puits quantique qui alimente la boîte quantique considérée.

3.5.1 Description du modèle

On considère une boîte quantique avec un seul niveau, pour simplifier, alimentée par un puits quantique. Le puits quantique, alimenté à $t = 0$ comprend i paires électrons-trous et la boîte quantique contient un nombre d'excitons noté j , j valant 0, 1 ou 2. Le système est donc décrit à tout instant par le couple de valeurs (i, j) .

On modélise son évolution sachant que l'état (i, j) , évolue vers :

- l'état $(i - 1, j + 1)$ pour $j < 2$ par capture d'une paire électron-trou du puits quantique à un taux $\frac{i}{t_{cap}}$
- l'état $(i - 1, j)$ si $i \geq 1$ par recombinaison radiative d'une paire électron-trou du puits quantique à un taux $\frac{i}{t_{QW}}$
- l'état $(i, j - 1)$ si $j = 1$ ou 2 par recombinaison radiative de l'exciton (si $j = 1$) ou du biexciton (si $j = 2$) de la boîte quantique à des taux respectifs $\frac{1}{t_x}$ et $\frac{1}{t_{xx}}$

L'ensemble des états d'arrivée de l'état (i, j) est résumé sur la figure 3.17.

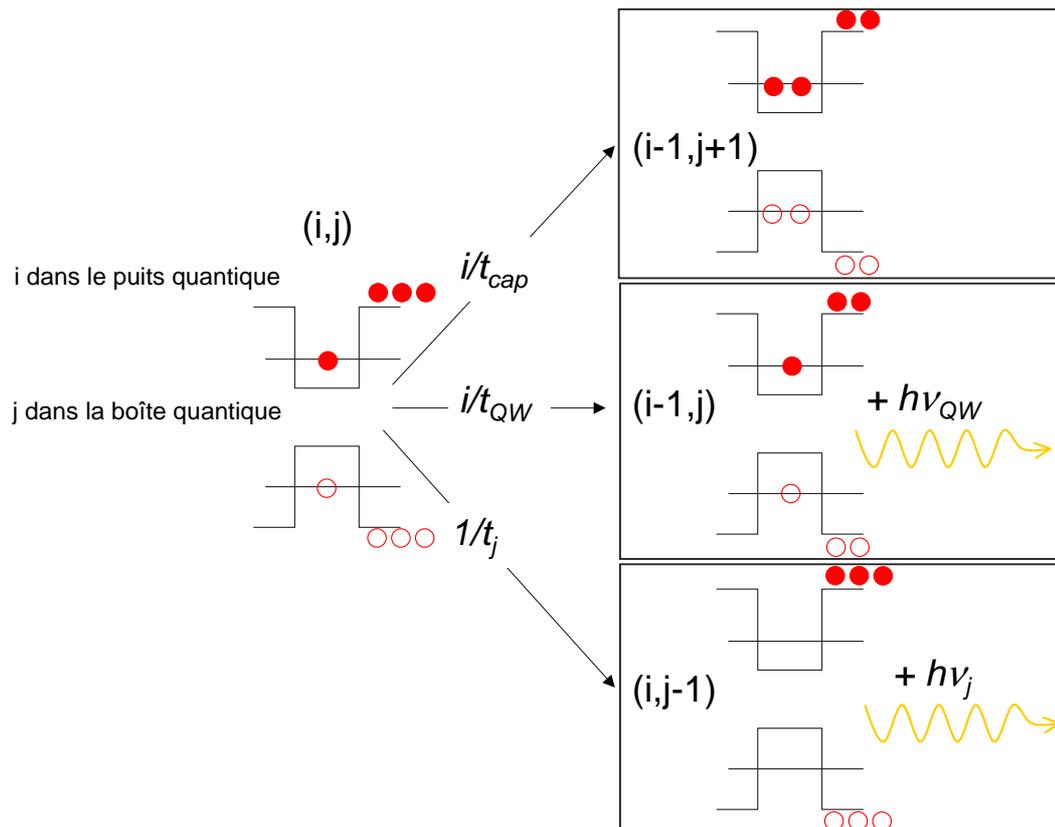


FIG. 3.17 – Schéma représentant les connexions entre les différents états d'occupation pris en compte dans le modèle. Partant d'un état (i, j) à i paires électron-trou dans le puits quantique et j excitons dans la boîte quantique, le système peut évoluer vers $(i-1, j+1)$ par capture d'une paire électron-trou dans la boîte quantique (en haut), vers $(i-1, j)$ par recombinaison d'une paire électron-trou du puits quantique (au centre) ou vers $(i, j-1)$ par recombinaison radiative d'un état discret de la boîte quantique (en bas).

On considère donc les 3 équations de taux suivantes :

$$\begin{aligned}\frac{dp(i,0)}{dt} &= -p(i,0)\left(\frac{i}{t_{QW}} + \frac{i}{t_{cap}}\right) + p(i+1,0)\left(\frac{i+1}{t_{QW}}\right) + \frac{p(i,1)}{t_x} \\ \frac{dp(i,1)}{dt} &= -p(i,1)\left(\frac{i}{t_{QW}} + \frac{i}{t_{cap}} + \frac{1}{t_x}\right) + p(i+1,1)\frac{i+1}{t_{QW}} + p(i+1,0)\frac{i+1}{t_{cap}} + p(i,2)\frac{1}{t_{xx}} \\ \frac{dp(i,2)}{dt} &= -p(i,2)\left(\frac{i}{t_{QW}} + \frac{i}{t_{cap}} + \frac{1}{t_{xx}}\right) + p(i+1,2)\frac{i+1}{t_{QW}} + p(i+1,1)\frac{i+1}{t_{cap}}\end{aligned}$$

Les conditions initiales sont les suivantes : en excitation non-résonante, on considère qu'à $t = 0$, la boîte quantique est vide. L'injection de paires électron-trou dans le puits quantique est supposée poissonnienne. La probabilité $p(n,0)$ d'avoir n paires électron-trou dans le puits quantique et 0 dans la boîte quantique à $t = 0$ suit la loi suivante :

$$p(n,0) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} = \frac{1}{n!} \left(\frac{P}{P_{sat}}\right)^n e^{-\frac{P}{P_{sat}}} \quad (3.16)$$

où $\langle n \rangle$ est le nombre de paires électron-trou créées par impulsion, dépendant linéairement de la puissance incidente P .

L'évolution du système pour une puissance d'excitation donnée est obtenue numériquement, en fonction des paramètres t_x , t_{xx} , t_{cap} , et t_{QW} . L'évolution de la luminescence de l'exciton est donnée par :

$$I_X(t) = \frac{1}{t_x} \sum_i p(i,1)(t) \quad (3.17)$$

De même, l'intensité instantanée de luminescence due à la recombinaison radiative du biexciton est donnée par :

$$I_{XX}(t) = \frac{1}{t_{xx}} \sum_i p(i,2)(t) \quad (3.18)$$

Nous allons tester ce modèle successivement sur les boîtes quantiques naturelles de GaAs à petites forces d'oscillateur, puis à grandes forces d'oscillateur, et enfin sur les boîtes quantiques d'InAs auto-organisées.

3.5.2 Modélisation de la dynamique des petites boîtes quantiques

La dynamique de la boîte quantique QD1 de l'échantillon à petites boîtes quantiques est calculée avec les temps de vie t_x , t_{xx} et t_{qw} mesurés. Le temps de capture est le seul temps dont nous n'avons pas de mesure directe. Nous déduisons sa valeur des intensités intégrées en fonction de la puissance. En effet, l'importance de la ré-alimentation du biexciton dépend du temps de capture ; plus le temps de capture est long, moins elle est importante. En ajustant le rapport des intensités intégrées I_{XX}/I_X représenté sur la figure 3.18a, nous déduisons une estimation du temps de capture. Le rapport expérimental $\frac{I_{xx}}{I_x}$ est bien reproduit pour un temps de capture $t_{cap} = 200 ps$, comme le montre la figure 3.18a. Sur cette figure, nous avons également reporté le calcul de ce rapport à partir du modèle analytique simple basé sur les équations 3.13 et 3.15, dans lequel la capture instantanée, est supposée n'avoir lieu qu'à $t = 0$.

Le temps de capture de 200 ps ainsi déduit est long comparé à la capture dans les boîtes quantiques d'InAs. Dans ces dernières, la capture est rendue extrêmement efficace par le couplage fort avec les phonons longitudinaux optiques. Dans les boîtes quantiques de GaAs, ces phonons optiques ne peuvent intervenir puisque la différence d'énergie entre le puits quantique et les boîtes quantiques

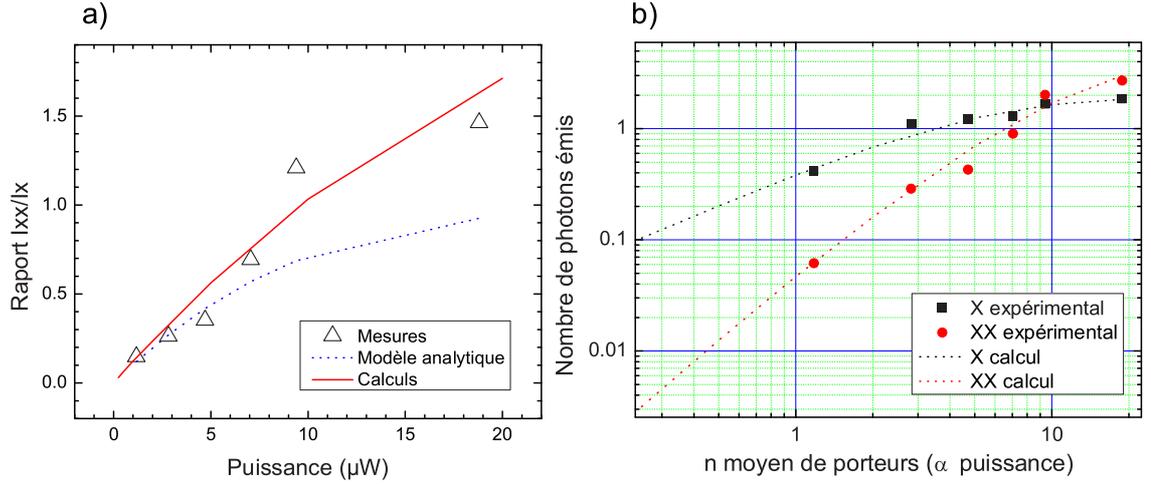


FIG. 3.18 – a-Rapport des intensités intégrées I_{xx}/I_x . Symboles : mesures à 4 K. Pointillés : modèle analytique basé sur les équations 3.13 et 3.15. Trait plein : calcul basé sur le modèle exposé. b- Intensités intégrées de l'exciton (symboles carrés) et du biexciton (symboles ronds) en fonction de la puissance d'excitation pour des boîtes quantiques de GaAs avec $t_x = 110 ps$, $t_{xx} = 60 ps$, $t_{qw} = 150 ps$ et $t_{cap} = 200 ps$.

($\sim 10 - 15 meV$) est très inférieure à celle d'un phonon longitudinal optique ($36 meV$). La figure 3.18b montre la comparaison entre les mesures et les calculs des intensités intégrées de l'exciton et du biexciton en fonction du nombre moyen de porteurs dans le système. Le coefficient de proportionnalité entre le nombre $\langle n \rangle$ de porteurs créés par impulsion et la puissance d'excitation, fixé par la saturation de l'exciton est : $\langle n \rangle = 9.4P(\mu W)$. Nous utilisons ce même coefficient pour tous les calculs.

Comme on peut le voir sur la figure 3.18b, le calcul rend compte du fait que l'intensité à saturation du biexciton est supérieure à celle de l'exciton. Le nombre de photons émis lors de la recombinaison radiative du biexciton à la plus forte puissance est de 3, du fait de la ré-alimentation. La ré-alimentation a lieu également, mais dans une moindre mesure sur l'exciton, qui émet 2 photons à la saturation.

La figure 3.19 montre la comparaison entre les mesures et les calculs des profils temporels d'émission de l'exciton et du biexciton mesurés 3 puissances d'excitation avec un temps de capture pris égal à $200 ps$.

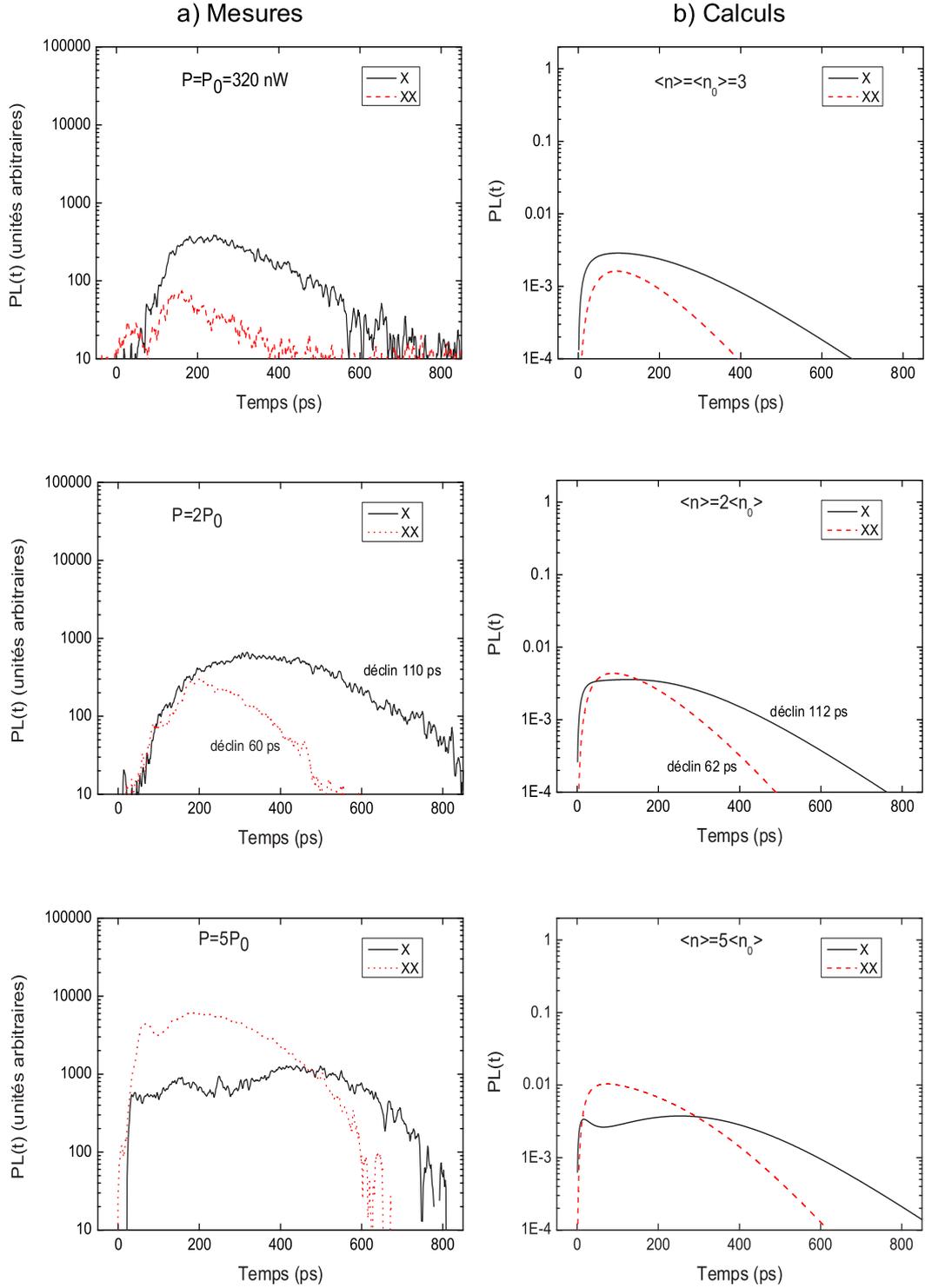


FIG. 3.19 – Comparaison des mesures et du calcul de la dynamique de l'exciton et du biexciton de la boîte QD1 de l'échantillon à petites boîtes quantiques. a-Intensités instantanées de photoluminescence mesurées à 4 K pour l'exciton (trait plein) et le biexciton (pointillés) pour $P = P_0 = 320 \text{ nW}$, $P = 2P_0$ et $P = 5P_0$. La même échelle est utilisée pour les différentes puissances. b-Intensités instantanées de photoluminescence calculées pour l'exciton (trait plein) et le biexciton (pointillés) pour $\langle n \rangle = \langle n_0 \rangle = 3$, $\langle n \rangle = 2\langle n_0 \rangle$, $\langle n \rangle = 5\langle n_0 \rangle$. La même échelle est utilisée pour les différents $\langle n \rangle$. Les temps de vie utilisés dans le calcul sont $t_x = 110 \text{ ps}$, $t_{xx} = 60 \text{ ps}$, $t_{qw} = 150 \text{ ps}$ et $t_{cap} = 200 \text{ ps}$.

Conformément aux observations, les calculs montrent que :

- Les temps de déclin de l'émission de l'exciton et du biexciton sont égaux à leur temps de vie radiatif respectif.
- La cascade radiative biexciton/exciton se manifeste par un retard à l'émission de l'exciton, pour les fortes puissances.

En conclusion, le modèle développé dans cette section rend compte de la dynamique d'émission du biexciton et de l'exciton, ainsi que du phénomène de ré-alimentation du biexciton, dû à un temps de vie radiatif biexcitonique court devant le temps de vie radiatif du puits quantique.

3.5.3 Modélisation de la dynamique des grandes boîtes quantiques

Lien entre le temps de déclin et les temps de vie du système : Pour analyser les mesures effectuées sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques, nous avons supposé que, dans les grandes boîtes quantiques, le temps de vie radiatif excitonique est court devant le temps de capture et le temps de vie du puits quantique. Afin de comprendre le lien entre le temps de déclin mesuré et les temps caractéristiques du système, nous effectuons un premier calcul des profils d'émission de l'exciton et du biexciton pour 2 temps de vie radiatifs différents : $t_x = 80 ps$ et $t_{xx} = 30 ps$. Dans les 2 cas, nous prenons $t_{xx} = t_x/2$, un temps de capture de $200 ps$ et un temps de vie radiatif de puits quantique de $300 ps$. La figure 3.20 représente les intensités instantanées de photoluminescence calculées pour $\langle n \rangle = 1$.

Comme attendu qualitativement, nous constatons que le temps de déclin de l'émission n'est pas

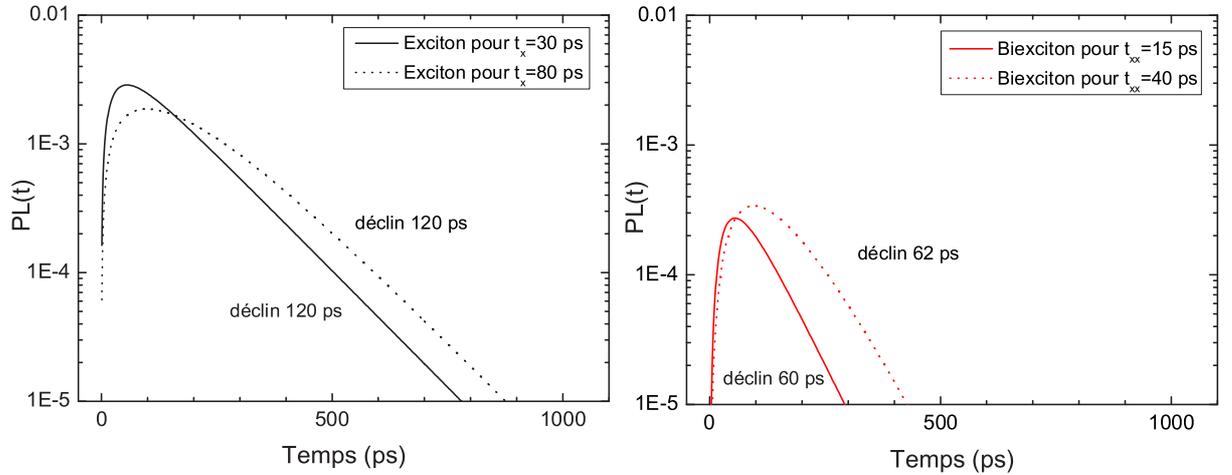


FIG. 3.20 – Intensités instantanées de photoluminescence calculées pour l'exciton (à gauche) et le biexciton (à droite) pour $\langle n \rangle = 1$ et pour 2 temps de vie radiatifs différents ($t_x = 30 ps$ et $t_x = 80 ps$) avec $t_{QW} = 300 ps$ et $t_{cap} = 200 ps$.

égal au temps de vie radiatif des états considérés. Le temps de déclin de la photoluminescence de l'exciton est de $120 ps$ dans les 2 cas ; celui du biexciton vaut environ la moitié du temps de déclin de l'exciton : $62 ps$ pour $t_{xx} = 15 ps$ et $60 ps$ pour $t_{xx} = 40 ps$.

Pour comprendre l'origine de ces temps de déclin, nous calculons sur la figure 3.21 le temps de déclin en fonction du temps de vie radiatif de l'exciton. On observe 2 régimes : pour des temps de vie radiatifs très courts, le temps de déclin de la luminescence vaut $(\frac{1}{t_{qw}} + \frac{1}{t_{cap}})^{-1}$. Pour des temps de vie radiatifs plus longs, le déclin de la luminescence est le temps de vie radiatif. La transition entre

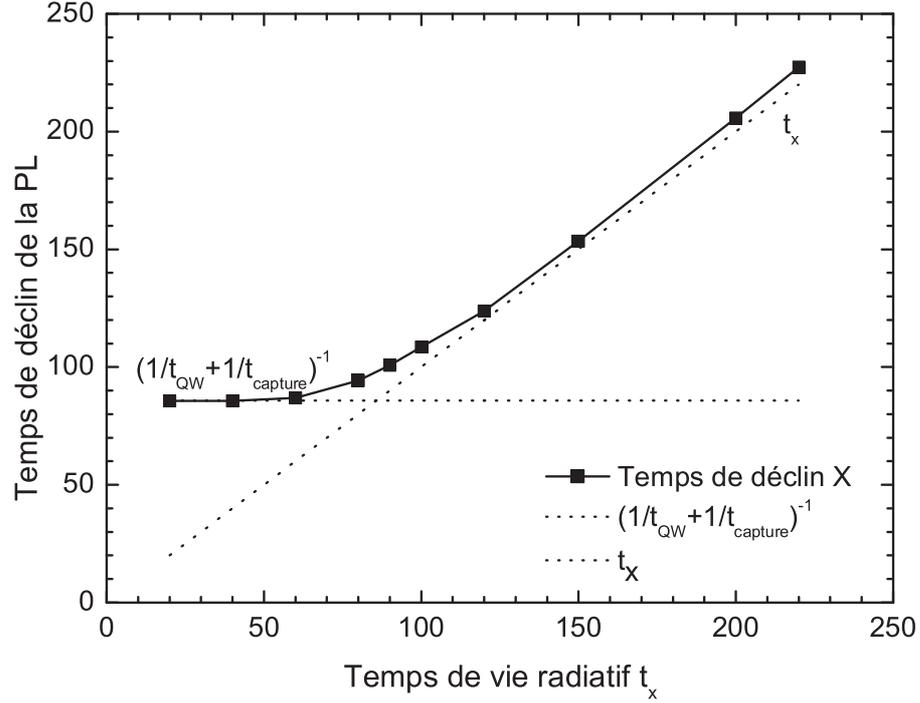


FIG. 3.21 – Temps de déclin de la photoluminescence en fonction du temps de vie radiatif excitonique t_x en prenant $t_{qw} = 150 ps$ et $t_{cap} = 200 ps$. Pour les temps de vie radiatifs très courts, la courbe a pour asymptote $t_x = (\frac{1}{t_{QW}} + \frac{1}{t_{capture}})^{-1}$. Pour les temps de vie radiatifs les plus longs, la courbe a pour asymptote la première bissectrice.

les 2 régimes a lieu pour $t_x = (\frac{1}{t_{qw}} + \frac{1}{t_{cap}})^{-1}$. Pour cette figure, nous avons utilisé les paramètres $t_{qw} = 150 ps$ et $t_{cap} = 200 ps$ de la boîte quantique QD1 de l'échantillon à petites boîtes quantiques. Cette figure confirme que les temps de déclin mesurés sur l'échantillon à petites boîtes quantiques sont effectivement les temps de vie radiatifs, puisque la transition entre les 2 régimes a lieu vers 85 ps.

De ce calcul, nous déduisons que les temps de déclin de 120 ps (resp. 60 ps) de l'exciton (resp. du biexciton) sur la figure 3.20 correspondent à t_{rel} (resp. $t_{rel}/2$), avec :

$$t_{rel} = \left(\frac{1}{t_{qw}} + \frac{1}{t_{cap}}\right)^{-1} = \left(\frac{1}{300} + \frac{1}{200}\right)^{-1} ps \quad (3.19)$$

Influence du temps de capture Nous avons maintenant, en dehors de t_x , 2 inconnues : le temps de capture t_{cap} et le temps du réservoir bidimensionnel qui alimente les boîtes quantiques t_{qw} . Ces 2 temps sont liés par la contrainte : $(\frac{1}{t_{qw}} + \frac{1}{t_{cap}})^{-1} = 300 ps$. Pour comprendre les rôles distincts de ces 2 temps, nous calculons sur la figure 3.22 l'intensité intégrée de l'émission de l'exciton et du biexciton pour 2 couples (t_{cap}, t_{qw}) différents ($t_{cap} = 600 ps, t_{qw} = 600 ps$), ($t_{cap} = 1000 ps, t_{qw} = 430 ps$). Les temps de vie radiatifs excitonique et biexcitonique sont fixés à $t_x = 30 ps$ et $t_{xx} = 15 ps$. Le nombre de photons émis par impulsion laser s'obtient par simple mesure de l'aire sous la courbe : $\int I_X(t)dt$ pour l'exciton et $\int I_{XX}(t)dt$ pour le biexciton.

La figure 3.22 montre que :

- Le phénomène de recapture diminue globalement pour l'exciton et le biexciton quand le rapport t_{cap}/t_{qw} augmente.

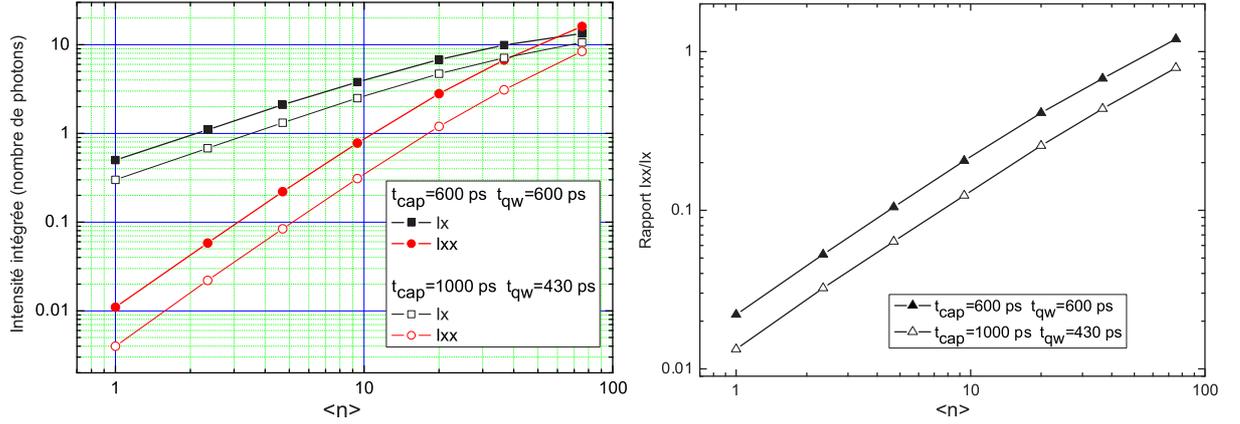


FIG. 3.22 – A gauche : Intensités intégrées de photoluminescence en fonction du nombre moyen de porteurs $\langle n \rangle$ calculées pour l'exciton (symboles carrés) et le biexciton (ronds) pour ($t_{cap} = 600$ ps, $t_{qw} = 600$ ps) (symboles pleins) et ($t_{cap} = 1000$ ps, $t_{qw} = 430$ ps) (symboles creux). Les temps de vie radiatifs excitonique et biexcitonique sont fixés à $t_x = 30$ ps, $t_{xx} = 15$ ps. A droite : rapport des intensités intégrées I_{xx}/I_x en fonction du nombre moyen de porteurs $\langle n \rangle$ pour ($t_{cap} = 600$ ps, $t_{qw} = 600$ ps) (symboles pleins) et ($t_{cap} = 1000$ ps, $t_{qw} = 430$ ps) (symboles creux).

- Le rapport des intensités I_{xx}/I_x tracé sur la partie droite de la figure 3.22 diminue quand le temps de capture augmente.
- L'augmentation du temps de capture a pour conséquence d'augmenter la puissance de saturation. La différence des puissances de saturation entre les 2 échantillons vient donc à la fois de la diminution du temps de vie radiatif excitonique et de l'augmentation du temps de capture.

Nous en concluons que l'absence de raie biexcitonique et la persistance du régime linéaire de l'intensité de l'exciton sur toute la gamme de puissances explorées observées sont la signature d'une capture très peu efficace.

Les profils d'émission sont calculés pour le couple ($t_{cap} = 1000$ ps, $t_{QW} = 430$ ps) et pour des temps de vie radiatifs $t_x = 30$ ps et $t_{xx} = 15$ ps. La figure 3.23 présente la comparaison des mesures aux calculs. Comme on peut le voir sur la figure 3.23, le temps de déclin de l'exciton confiné n'est pas son temps de vie radiatif.

Pour la plus forte puissance, le calcul met en évidence un retard à l'émission de l'exciton et une forte intensité biexcitonique. Le modèle ne permet pas de rendre compte de l'absence totale de biexciton. Nous n'avons pas d'explication claire de ce point. Nous supposons que le biexciton est soumis à des processus non-radiatifs beaucoup plus efficaces que l'exciton, ou que la capture en présence d'un exciton est beaucoup moins efficace que la capture dans une boîte quantique vide. D'autre part, le déclin mesuré (300 ps en moyenne) correspond à $(\frac{1}{t_{qw}} + \frac{1}{t_{cap}})^{-1} = 300$ ps. t_{QW} et t_{cap} sont donc nécessairement supérieurs à 300 ps. Or, nous avons mesuré un temps de déclin du puits quantique de 185 ps. Cela implique que le réservoir 2D qui alimente la boîte quantique a un temps de déclin différent de l'ensemble du puits quantique mesuré. Notre modèle, relativement simple, ne permet pas d'expliquer que le temps de vie de ce réservoir puisse être supérieur au temps de déclin du puits quantique. La réalité est donc certainement plus complexe. Il est possible, par exemple, que les temps de vie de ce réservoir et/ou le temps de capture ne soient pas constants au cours du temps.

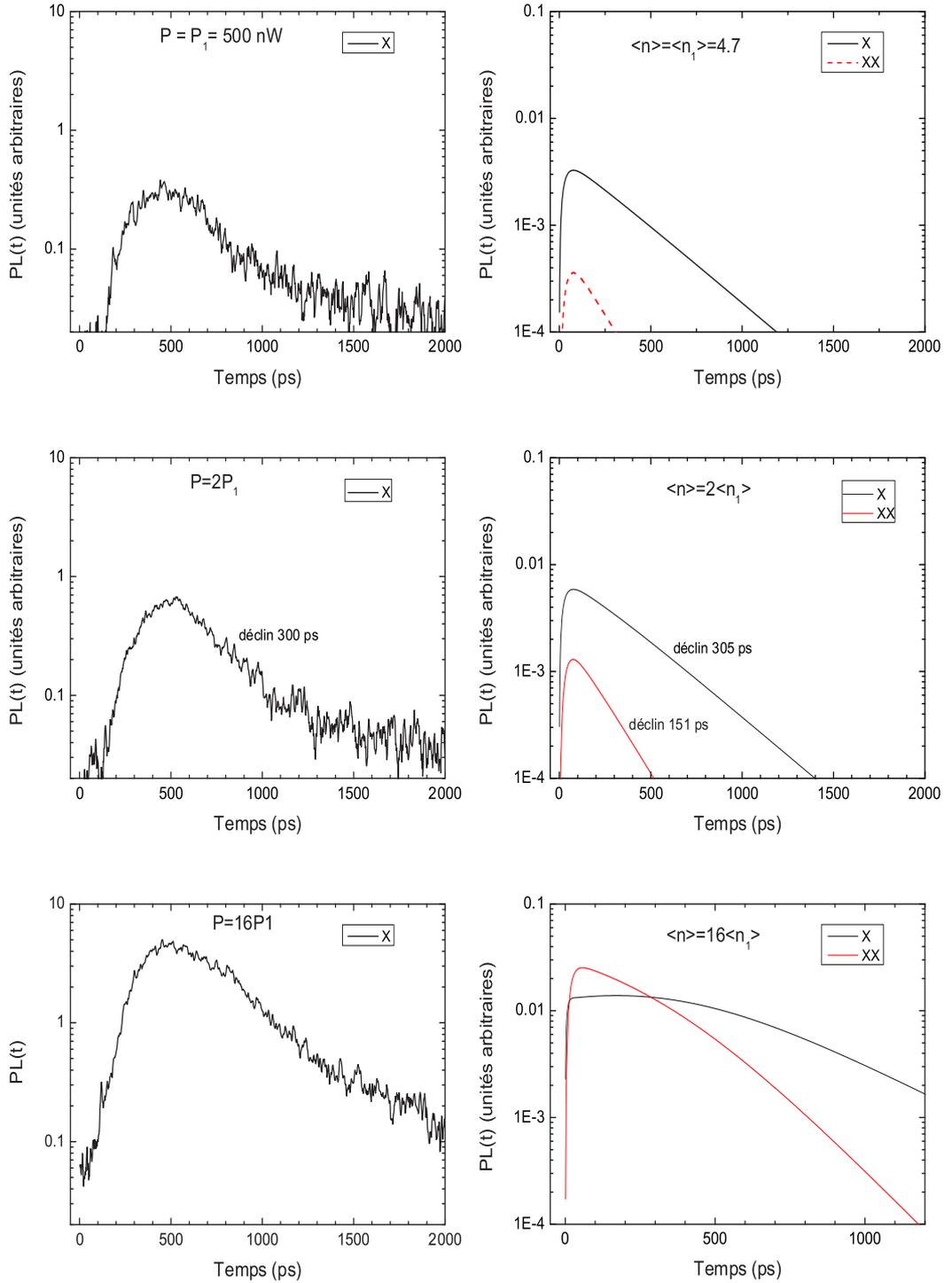


FIG. 3.23 – Comparaison des mesures à 4 K et du calcul de la dynamique de l'exciton et du biexciton de la boîte QDa de l'échantillon à grandes boîtes quantiques. a-Intensités instantanées de photoluminescence mesurées pour l'exciton (trait plein) et le biexciton (pointillés) pour $P = P_1 = 500 \text{ nW}$, $P = 2P_1$ et $P = 16P_1$. b-Intensités instantanées de photoluminescence calculées pour l'exciton (trait plein) et le biexciton (pointillés) pour $\langle n \rangle = \langle n_1 \rangle = 4.7$, $\langle n \rangle = 2 \langle n_1 \rangle$, $\langle n \rangle = 16 \langle n_1 \rangle$. Les temps de vie utilisés dans le calcul sont $t_x = 30 \text{ ps}$, $t_{xx} = 15 \text{ ps}$, $t_{qw} = 430 \text{ ps}$ et $t_{cap} = 1000 \text{ ps}$.

En résumé, nous avons montré que dans les grandes boîtes quantiques :

- Un temps de déclin de la luminescence différent du temps de vie radiatif excitonique prouve que $t_x \ll (\frac{1}{t_{QW}} + \frac{1}{t_{cap}})^{-1}$
- L'absence du biexciton s'explique par le fait que $t_x \ll t_{cap}$ et que $t_{cap} \gg t_{qw}$.
- La persistance du régime linéaire de l'intensité intégrée de l'exciton résulte de la conjugaison d'un temps de vie radiatif et d'un temps de capture long.

En résumé, on a les relations : $t_x \ll t_{qw} \ll t_{cap}$: l'étude de l'émission des grandes boîtes quantiques sous excitation pulsée montre que ces boîtes quantiques possèdent de grandes forces d'oscillateur.

3.5.4 Que donne ce modèle pour les boîtes quantiques d'InAs ?

Pour conclure cette section concernant la modélisation de l'émission des boîtes quantiques sous excitation impulsionnelle, nous allons voir ce que donne notre modèle sur les boîtes quantiques d'InAs auto-organisées, pour lesquelles le modèle analytique simple sans capture, basé sur les équations 3.13 et 3.15 est couramment utilisé pour décrire les expériences. Les paramètres utilisés pour les boîtes quantiques d'InAs auto-organisées sont les suivants [80, 70, 71] : $t_x = 1.5 ns$, $t_{xx} = 750 ps$, $t_{QW} = 200 ps$, $t_{cap} = 30 ps$. La figure 3.24 présente les courbes de déclin de la photoluminescence de l'exciton et du biexciton pour 3 valeurs de $\langle n \rangle$ différentes correspondant à 3 puissances d'excitation différentes. On observe que le temps de déclin de l'exciton (resp. du biexciton) est le temps de vie radiatif de l'exciton (resp. du biexciton). Ce résultat est conforme aux expériences de photoluminescence résolues en temps menées sur boîtes quantiques d'InAs, citons par exemple [27].

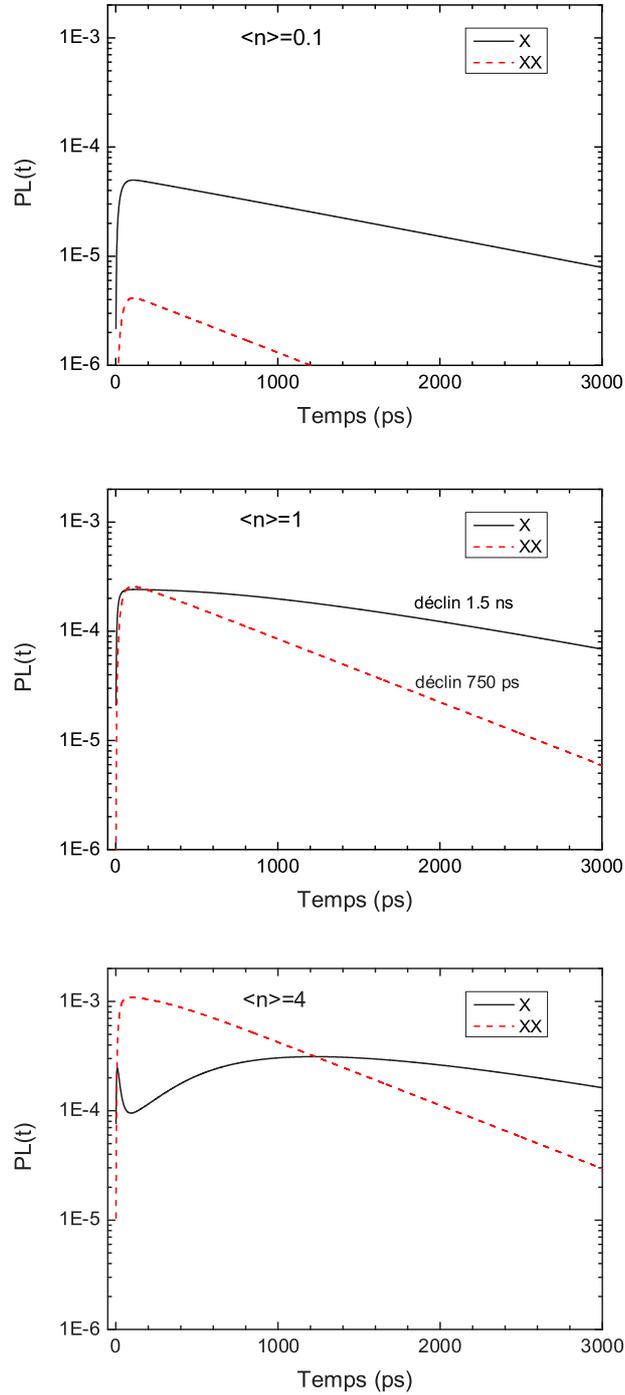


FIG. 3.24 – Intensités instantanées de photoluminescence calculées pour l’exciton (traits pleins) et le biexciton (pointillés) confiné dans une boîte quantique d’InAs pour 3 nombres moyens de porteurs dans le système. Les temps de vie considérés sont $t_x = 1.5 \text{ ns}$, $t_{xx} = 750 \text{ ps}$, $t_{qw} = 200 \text{ ps}$ et $t_{cap} = 30 \text{ ps}$.

La figure 3.25 représente le calcul de l'intensité intégrée en fonction de la puissance, et sa comparaison au modèle précédent sans recapture (équations 3.13 et 3.15). On constate que les

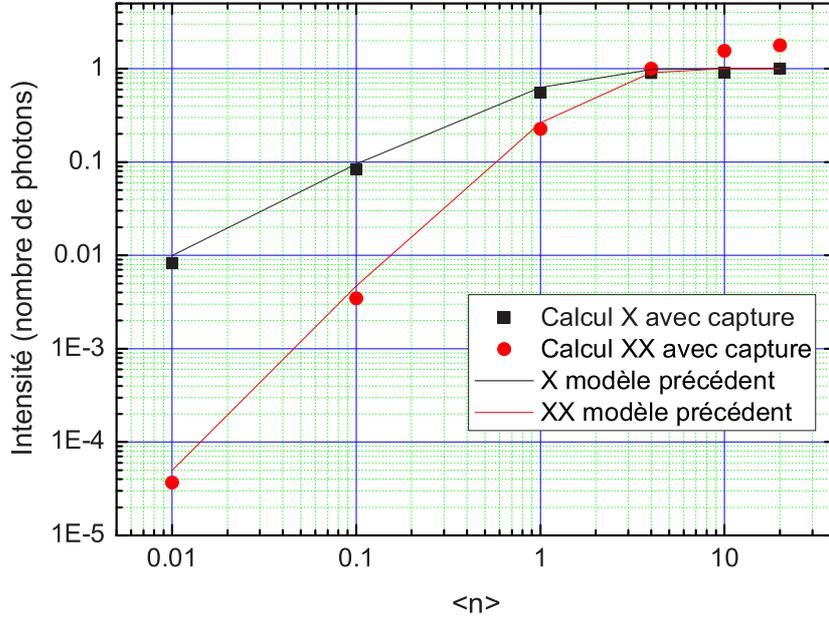


FIG. 3.25 – Intensités intégrées de l'exciton (symboles carrés) et du biexciton (symboles ronds) en fonction de la puissance d'excitation pour une boîte quantique d'InAs avec $t_x = 1.5 \text{ ns}$, $t_{xx} = 750 \text{ ps}$, $t_{qw} = 750 \text{ ps}$ et $t_{cap} = 30 \text{ ps}$.

2 modèles donnent des résultats très proches ; la prise en compte de la capture modifie très peu l'intensité d'émission de l'exciton. Celui-ci est émetteur de photons uniques, quelle que soit la puissance dans les 2 modèles. En revanche, à très forte puissance, notre modèle met en évidence un phénomène de recapture sur le biexciton. Des mesures sur boîtes quantiques d'InAs ont montré qu'effectivement à forte puissance, le nombre moyen de photons émis par le biexciton atteint est légèrement supérieur à 1 (1.2 dans la référence [80]). Notre calcul peut toutefois sur-estimer la recapture si les recombinaisons non-radiatives deviennent importantes, comme c'est le cas pour les mesas (piliers ou cristaux photoniques) de taille inférieure au micron. Les processus non-radiatifs ont alors pour effet d'annihiler les paires électrons-trous de la couche de mouillage beaucoup plus efficacement. Dans ce cas, le temps de déclin de la couche de mouillage doit être revue à la baisse, au cas par cas, selon les structures.

En conclusion, on retiendra que le modèle donne des résultats en excellent accord quantitatif avec les expériences menées sur les boîtes quantiques d'InAs. Dans la limite où le temps de capture devient négligeable par rapport aux autres temps caractéristiques du système (t_x , t_{xx} , et t_{qw}), il donne des résultats très proches du modèle simple considérant la capture instantanée à $t = 0$ et ignorant la recapture.

3.6 Mesures complémentaires : statistique d'émission

Nous venons de montrer, par des mesures de micro-photoluminescence résolue en temps, que les temps de vie radiatifs excitoniques sont plus courts que tous les temps caractéristique du système dans les grandes boîtes quantiques. Dans cette partie, nous présentons des mesures de statistique d'émission, les expériences de corrélation de photons, effectuées en collaboration avec I. Robert-Philip, S. Laurent, R. Braive et A. Beveratos. Dans une première partie, nous allons rappeler les résultats obtenus sur les petites boîtes quantiques par J. Hours dans sa thèse. Le rappel des propriétés d'émission de photons uniques des boîtes quantiques à faible force d'oscillateur nous permettra de mettre en évidence la spécificité des boîtes quantiques à grandes forces d'oscillateur dans une seconde partie.

3.6.1 Principe des mesures de corrélation

L'émission d'un oscillateur quantique est caractérisée par le fait que les photons sont émis de manière dégroupée. La probabilité d'émettre un second photon chute à 0 après l'émission d'un premier photon. Le premier effet de dégroupement de photons a été observé par Kimble *et al.* sur des atomes de sodium dans un jet atomique [20]. Depuis, ces propriétés de dégroupement de photons ont été observées sur une grande variété d'émetteurs isolés tels que les ions [72], les nanocristaux [73], les centres N-V de diamant [74], les molécules [75]. Dans le cas d'une émission aléatoire de photons d'un état cohérent, où la distribution de photons est poissonnienne, cette probabilité est au contraire constante dans le temps et indépendante des événements antérieurs. Dans le cas des sources thermiques au contraire où la distribution de photons est super-poissonnienne, on observe un groupement de photons [76, 77] : la probabilité de détecter un photon est plus élevée juste après en avoir détecté un. Pour plus de détails sur ce sujet, on pourra consulter, par exemple, la thèse d'A. Beveratos [78].

La statistique d'émission des photons est étudiée au moyen d'un montage expérimental de Hanbury Brown et Twiss décrit en annexe, greffé sur un montage de microphotoluminescence. Les expériences sont réalisées sous excitation pulsée, avec un laser titane saphir-pulsé délivrant des impulsions d'1.5 ps avec un taux de répétition de 82 MHz (i.e. toutes les 12.2 ns). Le montage de Hanbury Brown et Twiss fournit une mesure de la fonction d'auto-corrélation du second ordre de l'intensité du signal.

$$g^2(\tau) = \frac{\langle : I(t)I(t+\tau) : \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = \frac{\langle (a(t)\dagger a(t+\tau)\dagger a(t+\tau)a(t)) \rangle}{\langle a(t)\dagger a(t) \rangle^2} \quad (3.20)$$

Dans le cas d'un champ monomode, l'expression 3.20 devient :

$$g^2(\tau) = \frac{\langle \mathbf{n}^2 \rangle - \langle \mathbf{n} \rangle^2}{\langle \mathbf{n} \rangle^2} \quad (3.21)$$

où \mathbf{n} désigne le nombre moyen de photons. Dans le cas d'un état nombre monomode, la fonction d'autocorrélation du second ordre est simplement reliée au nombre moyen de photons dans le mode par :

$$g^2(\tau) = 1 - \frac{1}{\langle \mathbf{n} \rangle} \quad (3.22)$$

Pour un émetteur de photons uniques, $g^2(\tau) = 0$. Sinon, $g^2(\tau) \geq \frac{1}{2}$.

3.6.2 Petites boîtes quantiques

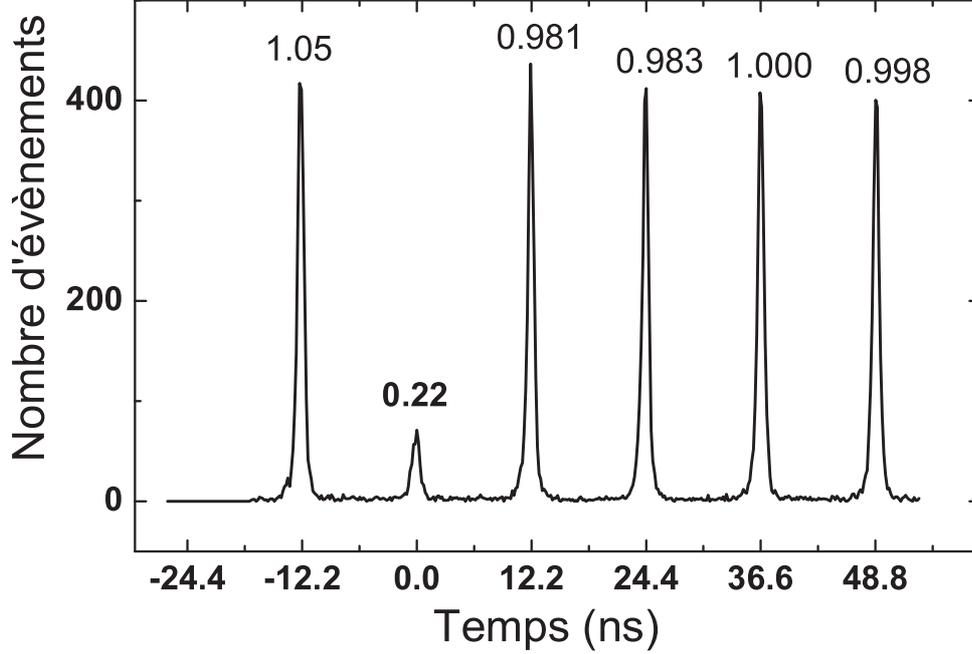


FIG. 3.26 – Histogramme de l'auto-corrélation de la raie X de la boîte quantique QD1 à faible puissance. Le nombre d'événements détectés est donné en fonction du délai de séparation entre une détection sur la photodiode "start" et une autre sur la photodiode "stop". Les nombres au-dessus des pics sont les valeurs de $g(\tau)$ à ces instants.

La figure 3.26 montre un histogramme du nombre d'événements en fonction du temps d'arrivée entre 2 photons successifs [79]. On observe des pics bien séparés, espacés de 12.2 ns, période de répétition T_{las} des impulsions laser. Les pics à $t = nT_{las}$ ($n \neq 0$) reflètent la probabilité conditionnelle de détecter un photon durant une impulsion sachant qu'un premier photon a été détecté au cours de l'émission nT_{las} plus tôt. Comme $t = nT_{las}$ est bien plus grand que le temps de vie de l'émetteur, l'émetteur est revenu dans l'état fondamental dans cet intervalle de temps. Les événements sont donc indépendants. Le pic à $t = 0$ correspond à la probabilité conditionnelle de détecter un photon sur la photodiode "stop" sachant qu'un premier photon a déjà été observé sur la photodiode "start" pendant le même impulsion. Son aire est 5 fois moins importante que les autres pics, ce qui est une signature de la nature non-classique de la lumière émise. Pour obtenir la fonction d'autocorrélation, il faut soustraire le bruit des données expérimentales, responsable de corrélation signal-bruit et bruit-bruit. Le nombre de photons détectés par les photodiodes étant $N1 = 3200$ et $N2 = 2400$ sur un fond $B1 = 280$ et $B2 = 180$. Le signal utile est donc $S1 = N1 - B1$ et $S2 = N2 - B2$. Il faut donc soustraire les corrélations bruit-bruit et bruit signal : $\frac{B1S2+S2B1+B1B2}{N1N2} \simeq 16\%$. Finalement la valeur de la fonction d'auto-corrélation du signal à $t = 0$ est donc de 6% ; cette valeur très faible permet d'affirmer que cette boîte quantique est un émetteur

de photons uniques.

En conclusion, nous retiendrons que, dans les boîtes quantiques ayant des forces d'oscillateur $f \leq 75$, soit ($t_x \geq 110 ps$), les excitons sont, au moins à faible puissance, des sources de photons uniques. Il n'y a donc pas de phénomène de recapture sur l'exciton.

3.6.3 Grandes boîtes quantiques

Des mesures de corrélation de photons ont également été effectuées sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques. La figure 3.27 présente 2 histogrammes de l'auto-corrélation de la raie X de la boîte quantique QDa, obtenus à 4K, l'un à faible puissance, l'autre à forte puissance.

A faible puissance la hauteur du pic central est de 0.75. A forte puissance, la différence de hauteur entre le pic central et les pics adjacents est inférieure ou égale au bruit. D'après la formule 3.22, nous déduisons que le nombre de photons émis par l'exciton par impulsion laser est supérieur à 1. De plus, le nombre de photons émis augmente avec la puissance. Dans les boîtes quantiques à grande force d'oscillateur, l'exciton n'est donc pas un émetteur de photons uniques; l'exciton est ré-alimenté plusieurs fois pendant le temps de vie des paires électrons-trous. Une résolution temporelle inférieure au temps de vie t_x serait nécessaire pour observer à l'intérieur du pic central un creux à 0 à $t = 0$ et prouver ainsi que la probabilité de détecter 2 photons au même instant est nulle. La largeur de ce trou attendu à $t = 0$ dépend a priori du temps de vie radiatif de l'exciton t_x mais aussi du temps caractéristique de pompage, c'est-à-dire de t_{cap} . Dans le cas limite considéré ($t_{cap} \gg t_x$), la largeur attendue est donnée par t_x et n'est donc pas observable dans cette expérience.

Synthèse : Nous avons montré au début de ce chapitre que la force d'oscillateur des boîtes quantiques naturelles de GaAs est fonction de leur taille latérale. Nous avons observé une force d'oscillateur minimale pour des boîtes quantiques dont la taille latérale est de l'ordre de grandeur du rayon de Bohr (6 nm) de l'exciton bidimensionnel.

Nous avons ensuite rapporté une mesure directe des temps de vie radiatif sur l'échantillon à petites boîtes quantiques, pour des temps de vie radiatifs de 100 à 220 ps, soit des forces d'oscillateur de 30 à 75. Une mesure directe du temps de vie radiatif des excitons des grandes boîtes quantiques n'est pas possible en excitation non-résonante, car, comme nous l'avons montré, le temps de déclin de l'émission excitonique n'est pas le temps de vie radiatif. Ceci est une première signature de temps de vie radiatifs courts. L'absence de cascade radiative et la persistance du régime linéaire de l'exciton prouvent également que le temps de vie radiatif excitonique est court devant les temps caractéristiques du système, qui sont le temps de capture, et le temps de recombinaison radiative des paires électron-trou du puits quantique qui alimente les boîtes quantiques. Enfin, les grandes forces d'oscillateur se manifestent dans la statistique d'émission par l'émission de plusieurs photons par impulsion laser.

En conclusion, l'ensemble des preuves expérimentales de grandes forces d'oscillateur excitoniques, font des excitons des grandes boîtes quantiques des candidats idéaux pour l'observation du couplage fort.

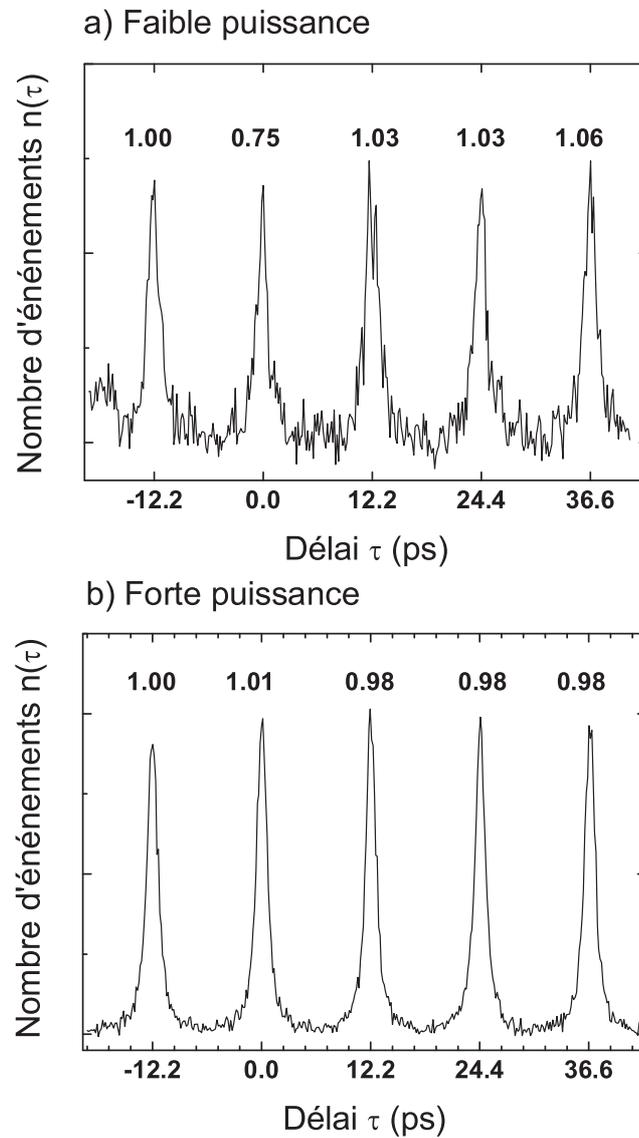


FIG. 3.27 – Histogramme de l'auto-corrélation de la raie X de la boîte quantique QDa sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques à 4 K. En haut : à basse puissance d'excitation. En bas : à forte puissance d'excitation.

Chapitre 4

Effet de l'environnement sur les raies d'émission de l'exciton et du biexciton

Le confinement tridimensionnel entraînant la discrétisation de la densité d'états dans les boîtes quantiques a conduit à comparer les boîtes quantiques semi-conductrices aux atomes artificiels. Cette analogie fructueuse a été et reste source d'inspiration pour l'optique quantique semi-conductrice, notamment pour l'objet de cette thèse, le couplage fort. Ceci ne doit pas faire oublier qu'une boîte quantique est un système à l'état solide, et l'analogie entre un atome isolé et un agrégat plongé dans une matrice cristalline de millions d'atomes en mouvement connaît évidemment quelques limites. Quand la température n'est pas nulle, l'interaction avec les vibrations des noyaux est une cause de processus de déphasage, entraînant un élargissement spectral. De plus, sous excitation non-résonante, l'émission de la boîte quantique a lieu en présence d'une distribution fluctuante de charges dans l'environnement immédiat des boîtes quantiques. L'interaction coulombienne avec ces charges est une source supplémentaire d'élargissement spectral. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à ces 2 types d'interactions entre les porteurs confinés dans la boîte quantique et leur environnement.

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la transition du couplage faible au couplage fort se produit lorsque le dédoublement de Rabi devient supérieur à la moyenne des largeurs de raie de l'émetteur et du mode de cavité. Or, comme nous le verrons au chapitre 6, l'accord spectral entre l'état confiné de la boîte quantique et le mode de cavité est obtenu par variation de la température. L'étude des largeurs spectrales et leur évolution avec la température est donc déterminante.

Les processus d'interaction avec l'environnement sont étudiés dans la partie 4.1 pour l'exciton et dans la partie 4.2 pour le biexciton.

4.1 Effet de l'environnement sur la raie d'émission excitonique

Le couplage exciton-phonons acoustiques a été mis en évidence expérimentalement dans les boîtes quantiques II-VI par L. Besombes *et al.* [84]. De ce couplage, il résulte que le premier état excité de la boîte quantique est une entité mixte exciton-nuage de phonons acoustiques. Ce couplage se traduit dans les spectres de photoluminescence par l'apparition de bandes latérales autour d'une raie centrale dite raie zéro-phonon (notée ZPL pour zero-phonon line).

Nous présentons ici la démonstration expérimentale d'ailes de phonons acoustiques dans les boîtes quantiques III-V de GaAs sur l'exciton et le biexciton. Nous modélisons l'interaction exciton-phonon sur la base du modèle de Huang-Rhys [82, 83]. Nous montrons que le paramètre qui conditionne

l'observation ou non de ces ailes de phonons est l'extension du mouvement de centre de masse. Nous démontrons l'importance de ce paramètre d'un point de vue théorique et expérimental. Nous observons en effet une différence d'intensité de couplage entre l'échantillon à petites boîtes quantiques et l'échantillon à grandes boîtes quantiques.

4.1.1 Mise en évidence expérimentale du couplage aux phonons acoustiques

La transition fondamentale d'une boîte quantique envisagée dans le cadre d'un émetteur à 2 niveaux isolé donne lieu à un spectre lorentzien dont la largeur est déterminée par les taux d'amortissement des cohérences. L'objet du paragraphe suivant est de mettre en évidence une déviation par rapport au profil lorentzien attendu.

Etude en température sur l'échantillon à petites boîtes quantiques Nous étudions dans ce paragraphe les spectres d'émission de 2 boîtes quantiques à différentes températures ; il s'agit de la boîte quantique QD1, déjà étudiée aux chapitres 2 et 3, et d'une boîte quantique que nous nommerons QD3. La figure 4.1 représente le spectre de luminescence des 2 boîtes quantiques à 10 K, à une intensité d'excitation de $30W.cm^{-2}$. A cette puissance, la boîte quantique QD1 ne présente pas de biexciton, contrairement à la boîte quantique QD3. Nous n'avons pas de mesure du temps de vie radiatif de QD3 ; néanmoins, si l'on suppose le temps de capture comparable sur les 2 boîtes quantiques de cet échantillon, on en déduit le temps de vie radiatif de l'exciton de la boîte QD3 est plus long que celui de la boîte quantique QD1 ($t_x = 110 ps$) car sa puissance de saturation est moins élevée. Comme le temps de vie radiatif est relié à la localisation du centre de masse, les excitons de ces 2 boîtes quantiques ont une extension du mouvement du centre de masse différente. Au chapitre 3, nous avons montré que la boîte quantique QD1 se trouve sur la partie droite de la courbe en U de dépendance de force d'oscillateur en fonction de la taille des boîtes quantiques. Si donc le temps de vie radiatif de l'exciton de la boîte quantique QD3 est plus long, l'extension du centre de masse de l'exciton de la boîte quantique QD3 est plus petite que celle de l'exciton de la boîte quantique QD1. A basse température, on observe pour les 2 boîtes quantiques un profil de

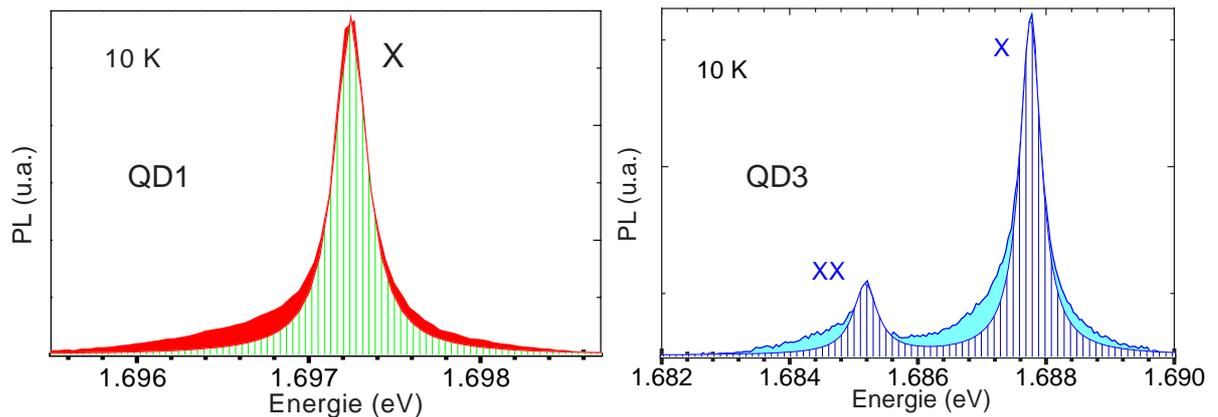


FIG. 4.1 – Spectres de photoluminescence à 10 K. A gauche : exciton de la boîte quantique QD1. A droite : Exciton et biexciton de la boîte quantique QD3. Des profils lorentziens en traits hachurés mettent en évidence la déviation des profils par rapport au profil lorentzien ainsi que leur asymétrie.

raie non-lorentzien à 10 K, tant pour l'exciton que pour le biexciton (voir figure 4.1). Les écarts entre la photoluminescence et les ajustements lorentziens (traits hachurés) sont mis en évidence sur la figure 4.1. Sur les 2 raies, cet écart semble plus important à basse énergie qu'à haute énergie :

les raies d'émission sont asymétriques.

La figure 4.11 représente des spectres obtenus sur les 2 boîtes quantiques QD1 et QD3 entre 5 et 30 K. Cette figure montre que, lorsque la température augmente :

- L'énergie d'émission baisse : ceci est dû à la diminution de la bande interdite de *GaAs* et d'*AlGaAs*.
- L'intensité diminue avec la température. Cette diminution d'intensité provient de l'activation de processus non-radiatifs avec la température, comme par exemple l'éjection de porteurs (électrons ou trous) confinés vers des états délocalisés du puits quantique de *GaAs*. De plus, la population thermique des états excités de trous lourds, situés à quelques *meV* fait diminuer la fraction d'états optiquement actifs, car la paire électron-trou formée par un électron dans l'état fondamental et un trou dans le premier état excité n'est pas active optiquement.
- Les raies excitoniques se symétrisent progressivement et retrouvent une forme quasi-lorentzienne vers 25-30 K.

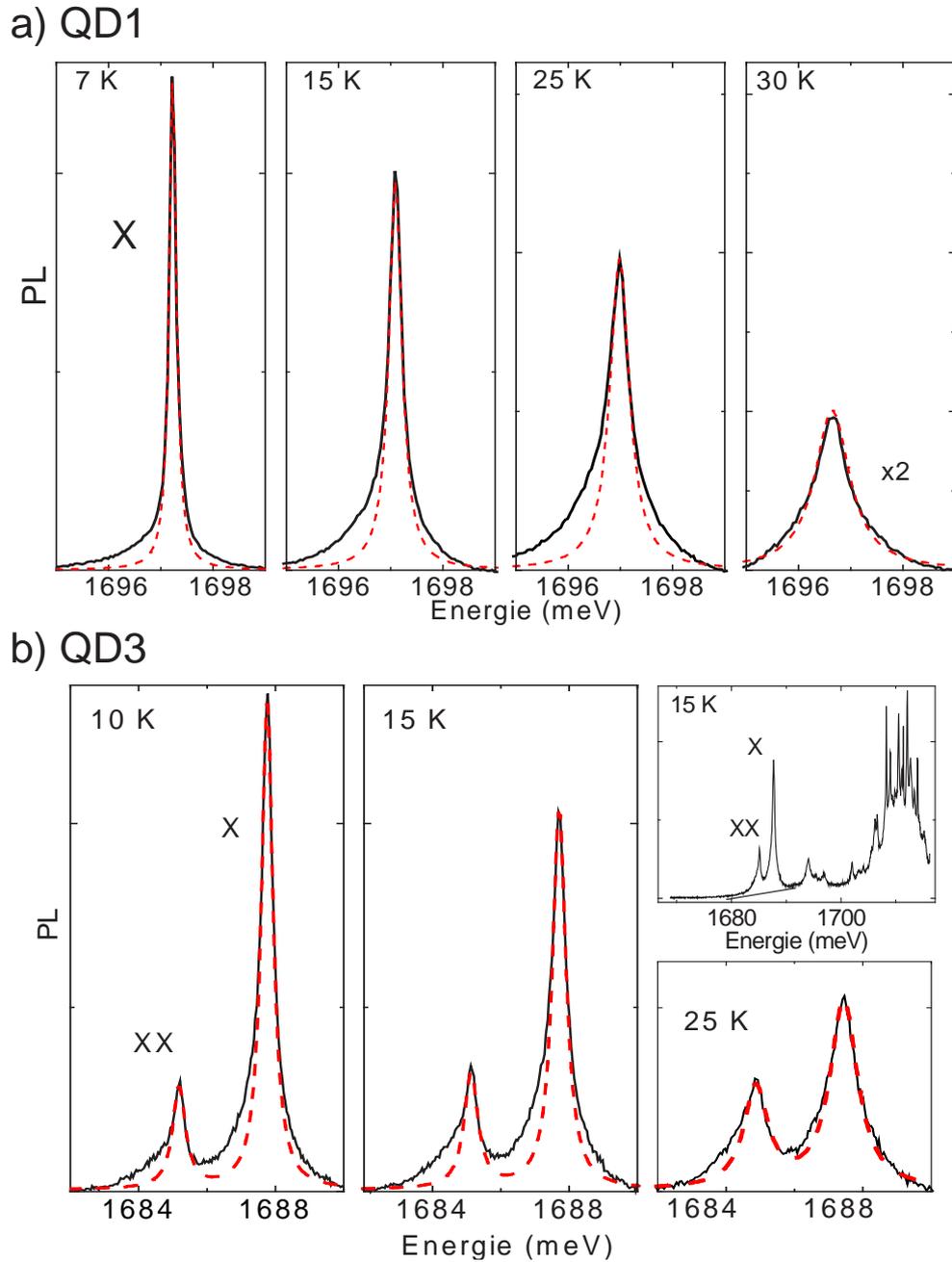


FIG. 4.2 – Spectres de photoluminescence en fonction de la température a-sur la boîte QD1 b-sur la boîte quantique QD3. La même échelle est utilisée pour les différentes températures. Des lorentziennes sont représentées en pointillés afin de mettre en évidence la déviation par rapport au profil lorentzien attendu et l'asymétrie des raies. L'insert de la figure b montre le spectre à 15K sur une plus grande fenêtre spectrale.

Etude en température sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques Une étude en température a également été menée sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques. Nous nous intéressons à une boîte quantique nommée QDc, représentée sur la figure 4.3. Le profil de cette raie est gaussien et non lorentzien, comme le montre l'insert de la figure 4.3. Nous donnerons un peu plus loin dans le chapitre une interprétation physique de ce profil spectral.

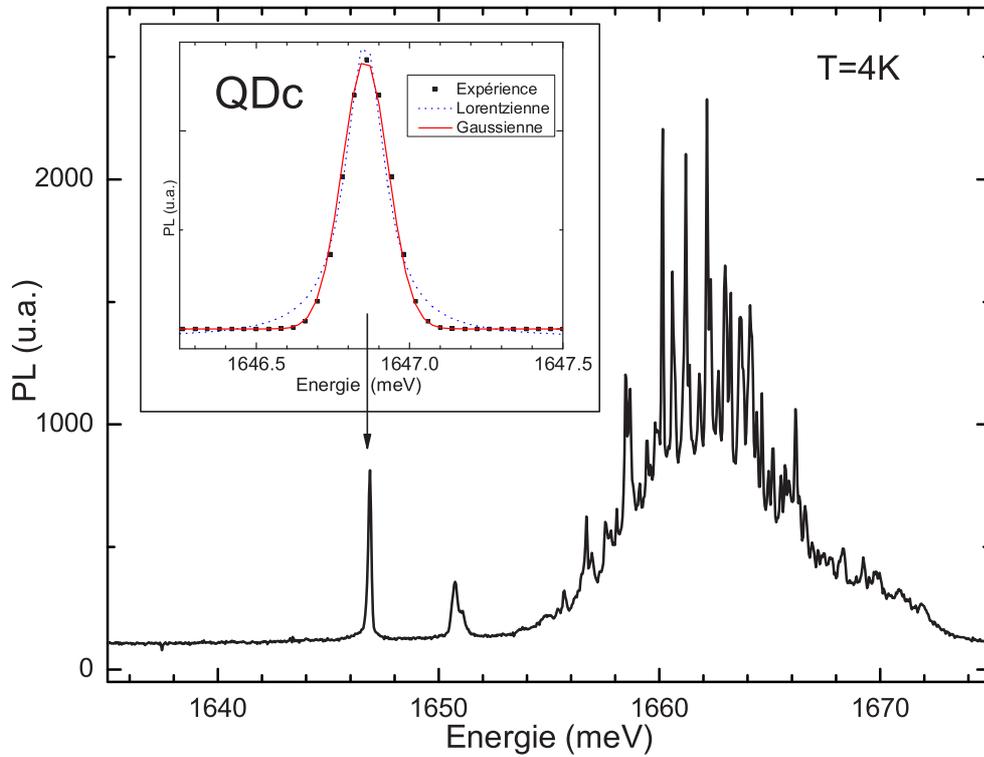


FIG. 4.3 – Spectre d'émission du microdisque contenant la boîte quantique QDc à 4K. Insert : Des ajustements gaussiens et lorentziens de la raie d'émission de l'exciton de la boîte quantique QDc sont superposés au spectre pour mettre en évidence le profil gaussien de la raie.

La figure 4.4 représente les spectres obtenus sur la boîte quantique QDc à différentes températures entre 4 et 38 K. Comme pour les boîtes quantiques précédentes, on observe une asymétrie de raie d'émission de l'exciton. Pour mettre en évidence cette asymétrie, nous avons ajusté le centre de la raie d'émission par une gaussienne.

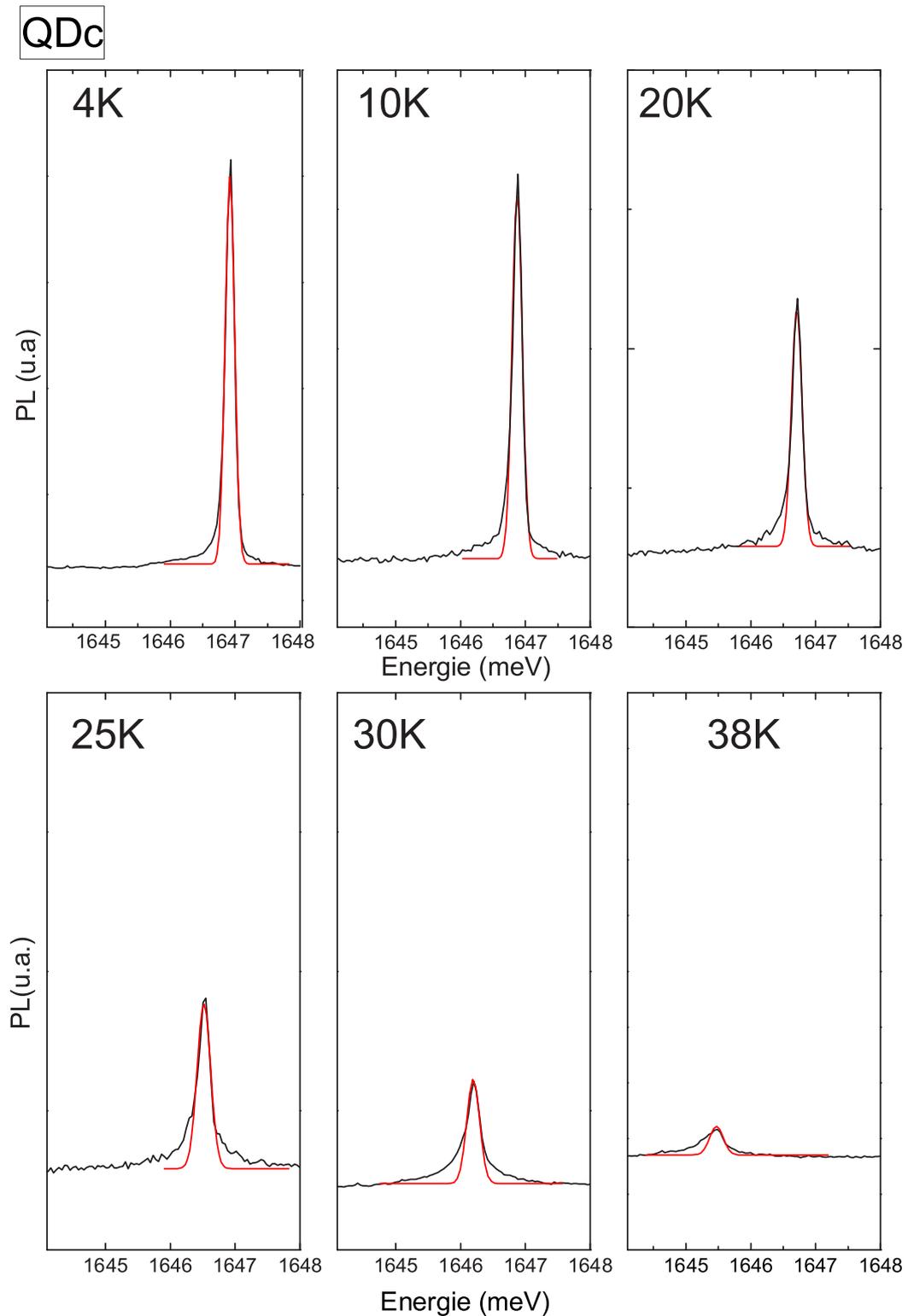


FIG. 4.4 – Spectres de l'exciton de la boîte quantique QDc à différentes températures. La même échelle est utilisée pour les différentes températures. Le centre de la raie est ajusté par une fonction gaussienne.

Evolution des largeurs des raies d'émission avec la température La figure 4.5 représente la largeur à mi-hauteur des raies d'émission en fonction de la température. On observe une augmentation avec 2 pentes :

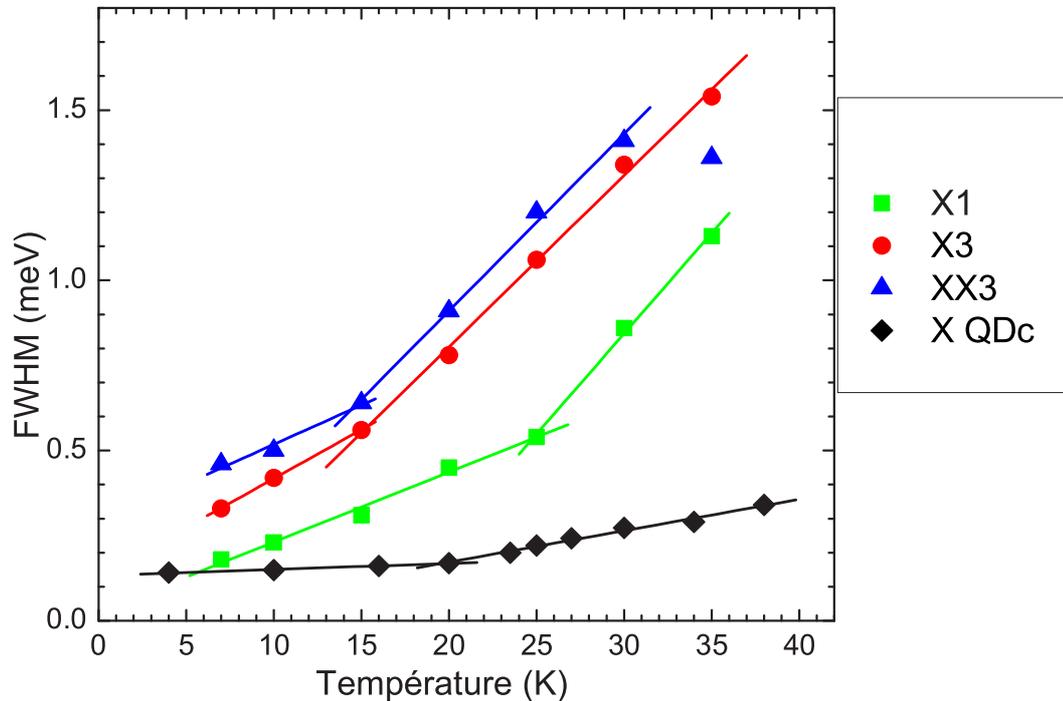


FIG. 4.5 – Evolution de la largeur à mi-hauteur des raies d'émission en fonction de la température. Des ajustements linéaires servent à mettre en évidence la rupture de pente.

- A basse température, la mesure de la largeur à mi-hauteur correspond à la largeur de la raie zéro-phonon. Les pentes mesurées sont de $21 \mu\text{eV.K}^{-1}$ pour X1, $29 \mu\text{eV.K}^{-1}$ pour X3 et $23 \mu\text{eV.K}^{-1}$ pour XX3. Pour la raie X de la boîte quantique QDc, cette pente est de seulement $2.7 \mu\text{eV.K}^{-1}$. Notons que la largeur de raie de l'exciton de la boîte QDc, qui est de $140 \mu\text{eV}$ à 4K, n'est pas limitée par la résolution du dispositif expérimental, qui est de $90 \mu\text{eV}$.
- A plus haute température, typiquement vers 15 K pour QD1, 25 K pour QD3, et environ 25-30K pour QDc, la raie zéro-phonon et les bandes latérales contribuent à la largeur à mi-hauteur. A cette température, l'élargissement dû au déphasage pur (c'est à dire déclin de la cohérence sans perte de population) s'additionne à celui de la raie zéro-phonon. Les pentes mesurées sont de 50 à $60 \mu\text{eV.K}^{-1}$ pour les boîtes quantiques QD1 et QD3. La pente mesurée sur QDc est beaucoup plus faible; elle vaut $9 \mu\text{eV.K}^{-1}$. Les largeurs de raies des transitions des boîtes quantiques QD1 et QD3 sont beaucoup plus élargies par l'augmentation de la température que celle de l'exciton de la boîte quantique QDc; à 30K les largeurs de ces transitions valent entre 0.85 à 1.4 meV, tandis que la largeur de l'exciton de la boîte quantique QDc vaut 0.27 meV.

Cette figure met clairement en évidence la différence entre les 2 échantillons : quelle que soit la température, l'exciton de la boîte QDc est plus fin que celui de QD1 et QD3. De plus, l'élargissement avec la température est beaucoup moins important sur l'exciton de la boîte quantique QDc. Nous allons effectivement démontrer que l'interaction avec les phonons est beaucoup moins importante dans les grandes boîtes quantiques, telles QDc. Dans une moindre mesure, mais pour la même raison

(l'exciton de la boîte quantique QD1 est moins localisé que celui de QD3), on observe également une différence entre les 2 boîtes QD1 et QD3.

4.1.2 Estimation du couplage exciton-phonon

De telles bandes latérales sur les raies d'émission excitoniques ont également été observées sur l'exciton dans les boîtes quantiques II-VI [84] et dans les boîtes d'InAs [99, 98] ainsi que sur le trion négatif dans ces dernières [97]. Elles sont dues au couplage non-perturbatif entre les excitons localisés et les phonons acoustiques. Ce problème a été traité remarquablement dans la thèse de L. Besombes [85] pour un système de boîtes quantiques à fluctuations d'interface *CdTe*, par extension du modèle de Huang-Rhys aux excitons localisés. En effet, les phonons longitudinaux acoustiques interagissent avec les excitons via le potentiel de déformation dû au mouvement des noyaux. L'hamiltonien du système {exciton, phonons} est la somme d'un terme pour l'exciton, un terme pour les phonons, traités comme des oscillateurs indépendants et d'un terme de couplage exciton-phonon non-nul en présence de l'exciton :

$$H = H_{exciton} + H_{phonons} + H_{couplage} \quad (4.1)$$

avec

$$\begin{aligned} H_{exciton} &= c^\dagger c E_x \\ H_{phonons} &= \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} (\hbar\omega_{\mathbf{q}} + \frac{1}{2}) \\ H_{couplage} &= c^\dagger c M_{\mathbf{q}} (b_{\mathbf{q}}^\dagger + b_{\mathbf{q}}) \end{aligned}$$

où c et c^\dagger désignent les opérateurs annihilation et création pour l'exciton et b et b^\dagger les opérateurs annihilation et création pour les phonons. $M_{\mathbf{q}}$ est l'élément de matrice du couplage via le potentiel de déformation. Il s'écrit :

$$M_{\mathbf{q}} = \sqrt{\frac{\hbar|q|}{2\rho u_s V}} (D_c \langle X | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_e} | X \rangle - D_v \langle X | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_h} | X \rangle) \quad (4.2)$$

où ρ est la masse volumique du matériau, V le volume de quantification, D_c et D_v le potentiel de déformation de la bande de conduction et de la bande de valence. Dans le modèle de Huang-Rhys, l'interaction avec les phonons n'est pas traitée en perturbation ; on prend en compte les nouveaux états-propres résultant du couplage de l'état discret excitonique avec le continuum des phonons. Ces nouveaux états-propres sont des états mixtes exciton-phonons ; cependant, il n'y a pas d'intrication exciton-phonon. Ils restent factorisables en un produit tensoriel exciton \otimes phonons.

Le premier état excité est une combinaison linéaire d'états $|X \otimes n \text{ phonons}\rangle$ avec n quelconque. La transition fondamentale de la boîte quantique a donc lieu entre ce premier état excité et le réservoir de phonons. Cela se traduit en photoluminescence par un spectre formé d'une raie centrale ($n = 0$) et des bandes latérales ($n \neq 0$), correspondant à la recombinaison radiative excitonique assistée par l'émission ou l'absorption de phonons. La probabilité que la transition ait lieu avec émission ou absorption de p phonons est donnée par :

$$W_p(\mathbf{q}) = \left(\frac{n_{\mathbf{q}} + 1}{n_{\mathbf{q}}}\right)^{\frac{p}{2}} e^{-g_{\mathbf{q}}(2n_{\mathbf{q}}+1)} I_p(g_{\mathbf{q}} \sqrt{n_{\mathbf{q}}(n_{\mathbf{q}} + 1)}) \quad (4.3)$$

où le nombre d'occupation de phonons suit une distribution de Bose pour un potentiel chimique nul : $n_{\mathbf{q}} = \frac{1}{\exp E/kT-1}$. $g_{\mathbf{q}}$ est le paramètre de Huang-Rhys, caractérisant la force du couplage exciton-phonon défini par :

$$g(\mathbf{q}) = \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{(\hbar\omega_{\mathbf{q}})^2} \quad (4.4)$$

La fonction $I_p(n_q)$ est la fonction de Bessel d'argument complexe qui décrit la probabilité que l'exciton soit "habillé" par 0,1,2,...phonons.

- Les termes avec $p > 0$ correspondent à la création de p phonons pendant la transition optique, c'est-à-dire que la recombinaison radiative s'accompagne de l'émission de p phonons.
- Le terme avec $p = 0$ donne lieu à la raie zéro-phonon : aucun phonon n'est créé ni absorbé pendant la transition.
- Les termes avec $p < 0$ correspondent à la recombinaison radiative accompagnée de l'absorption de p phonons, ce qui n'est possible qu'à température finie, quand des phonons sont thermiquement activés dans l'état initial.

Chaque valeur de p non-nulle donne lieu à une réplique discrète d'amplitude W_p sur les flancs de la transition zéro phonon ($p = 0$). Par simplicité, nous discrétisons la relation de dispersion des phonons et considérons une distribution discrète de N modes q_i d'énergie $\hbar\omega_{q_i}$. La distribution spectrale de l'intensité d'émission est alors le produit des probabilités pour que la transition optique implique simultanément p_i photons de chaque mode q_i :

$$I(E) = \sum_{p_1=0}^{p_1=\infty} \dots \sum_{p_N=0}^{p_N=\infty} W_{p_1} \dots W_{p_N} \delta(E - E_x + p_1\hbar\omega_1 + \dots + p_N\hbar\omega_N) \quad (4.5)$$

où p_i est le nombre de phonons du mode i impliqué dans la transition optique.

Pour calculer le couplage dans ces boîtes quantiques, nous ne considérons que les modes acoustiques longitudinaux [86, 89], pour lesquels la relation de dispersion isotrope est approchée par celle de Debye :

$$\omega = u_s q \quad (4.6)$$

où u_s est la vitesse moyenne du son dans le matériau [83]. Les phonons considérés sont ceux du GaAs massif. En effet, les propriétés mécaniques du *GaAs* et de l'*Al_{0,33}Ga_{0,67}As* étant très proches, on suppose que les modes de vibrations s'étendent dans tout le matériau. Nous considérons une fonction d'onde de l'exciton de la forme :

$$\Psi(r_e, r_h) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{-\frac{R_{xy}^2}{2\xi^2}} e^{-\frac{\rho}{\lambda}} \chi_e(z_e) \chi_h(z_h) \quad (4.7)$$

où R_{xy} décrit le mouvement du centre de masse et ρ le mouvement relatif de la paire électron-trou, et V est le volume de normalisation. λ est la distance moyenne entre l'électron et le trou, et vaut 6 nm dans un puits quantique de 30 de *GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As* [93]. ξ est un paramètre ajustable décrivant l'extension latérale du centre de masse. Le calcul fournit les valeurs $\xi_1 = 4.7 \text{ nm}$ pour la boîte quantique *QD1*, $\xi_3 = 3.45 \text{ nm}$ pour la boîte quantique *QD3* et ($\xi_c = 7 \text{ nm}$ pour la boîte quantique *QDc*. Le choix des valeurs de D_c et D_v fixe, à ξ , donné l'intensité du couplage. En effet, au premier ordre, $M_q \propto (D_c - D_v)$. Les valeurs de D_c et D_v trouvées dans la littérature sont assez dispersées, allant de 1.5 à 6.5 eV pour D_c et de -13.5 à -7 eV pour D_v . [90]. La détermination de ξ est liée aux valeurs retenues. En conséquence, le paramètre ξ ne fournit pas de détermination absolue de

la taille de la boîte quantique. Pour tous les calculs présentés ici, nous prenons $D_c = -11.5 \text{ eV}$ [91], $D_v = 5.6 \text{ eV}$ [92], valeurs déterminées sur des échantillons réalisés dans le même bâti d'épitaxie que nos échantillons.

Dans l'approximation du puits quantique infini, les fonctions enveloppes $\chi_e(z_e)$ et $\chi_h(z_h)$ sont simplement : $\cos(\frac{\pi z_{e,h}}{L_z})$, ce qui conduit à une expression analytique approchée pour l'élément de matrice du couplage [86] :

$$M_q = \sqrt{\frac{\hbar|q|}{2\rho u_s V}} (D_c \Xi_e(q_{\parallel}) - D_v \Xi_h(q_{\parallel})) I_{\perp}(q_z) e^{-\frac{\xi^2 q^2}{4}} \quad (4.8)$$

où les fonctions Ξ_e et Ξ_h sont définies par :

$$\Xi_{e,h} = \frac{1}{(1 + (\frac{b_{e,h}}{2})^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (4.9)$$

avec

$$b_{e,h} = \frac{m_{e,h}^*}{M_{\parallel}^*} |q_{\parallel}| \lambda \quad (4.10)$$

où $m_e^* = 0.057m_0$ et $m_p^* = 0.45m_0$ sont les masses effectives de l'électron et du trou dans la matériau, m_0 désignant la masse de l'électron dans le vide. $I_{\perp}(q_z)$ est l'intégrale de recouvrement de la fonction d'onde de l'électron et du trou avec l'onde plane des phonons acoustiques perpendiculairement au plan du puits :

$$I_{\perp}(q_z) = \frac{2}{L_z} \int_{-\frac{L_z}{2}}^{\frac{L_z}{2}} \cos^2\left(\frac{\pi z_{e,h}}{L_z}\right) e^{iq_z z} dz \quad (4.11)$$

La probabilité d'interaction avec un phonon de vecteur d'onde \mathbf{q} est proportionnelle au module au carré de l'élément de matrice M_q de l'équation 4.8. Or, d'après cette équation, il apparaît 3 vecteurs d'onde de coupure, au-delà desquels le couplage est négligeable. C'est naturellement le plus petit des 3 qui sera le vecteur d'onde de coupure :

- Pour un phonon se propageant selon z , $q_{\parallel} = 0$. Le terme $|I_{\perp}(q_z)|^2$ devient faible pour $q_z > \frac{2\pi}{L_z}$.
- Les fonctions $\Xi_{e,h}$ deviennent négligeables quand $q < \min(\frac{2M_{\parallel}^*}{m_{e,h}^* \lambda})$
- Pour un phonon dans le plan du puits, $q_z = 0$, le terme en $e^{-\frac{\xi^2 q^2}{2}}$ devient faible pour $q_{\parallel} > \frac{2}{\xi}$

La figure 4.6 résume l'ensemble de ces probabilités d'interaction. On voit sur cette figure que c'est le terme concernant l'extension du centre de masse qui impose le vecteur d'onde de coupure le plus faible. Cette figure justifie également l'approximation suivante : on considère le puits infiniment étroit afin d'écrire :

$$I_{\perp}(q_z) \simeq I_{\perp}(0) \simeq 1 \quad (4.12)$$

Cette approximation est justifiée tant que le vecteur d'onde de coupure q_{zc} reste grand devant les 2 autres.

Influence du confinement Pour comprendre l'influence du confinement (à travers le paramètre ξ), considérons le paramètre de Huang-Rhys, caractérisant la force du couplage exciton-phonon :

$$g(\mathbf{q}) = \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{(\hbar\omega_q)^2} \quad (4.13)$$

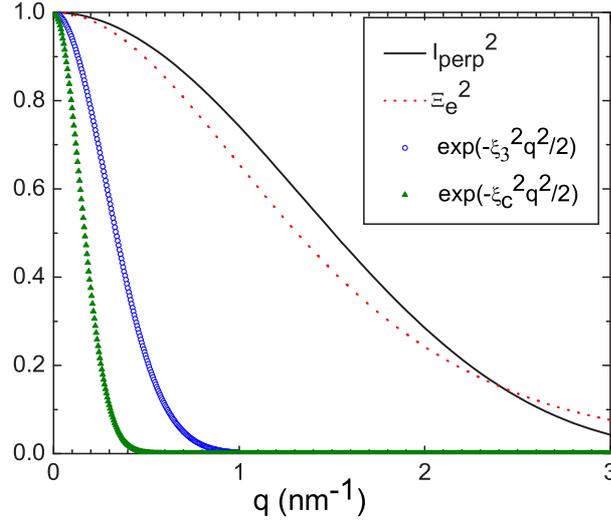


FIG. 4.6 – Probabilité d'interaction entre un exciton localisé et un phonon de vecteur d'onde $q = \sqrt{q_{\parallel}^2 + q_z^2}$. I_{perp}^2 représente la dépendance en fonction de la composante q_z pour un puits quantique d'épaisseur $L_z = 3 \text{ nm}$. Ξ_e^2 représente le facteur dû au mouvement de l'électron. Les 2 autres courbes représentent la dépendance de la probabilité en fonction du paramètre de localisation ξ pour 2 valeurs de ce paramètres : $\xi_3 = 3.45 \text{ nm}$ et $\xi_c = 7 \text{ nm}$

Comme nous avons considéré une relation de dispersion isotrope, chaque mode est caractérisé par $|q|$. Nous pouvons donc définir la constante de couplage intégrée sur toutes les directions de q , qui est le résultat de l'intégration, à module de q fixé de la constante de couplage $g(q)$. On se ramène ainsi d'un continuum 3D à un continuum 1D. Le facteur de Huang-Rhys est tracé sur la figure 4.7 pour les paramètres ξ_1 , ξ_3 et ξ_c des boîtes quantiques QD1, QD3 et QDc. De cette figure, on déduit que le confinement influence de 2 façons la force de couplage :

- La force de couplage est d'autant plus grande que l'extension du centre de masse est petite.
- Le maximum est atteint pour des valeurs d'énergie du phonon d'autant plus grandes que l'extension du centre de masse est petite : il est atteint pour un vecteur d'onde d'environ $\frac{1}{\xi}$. De plus, les phonons ayant une énergie supérieure à $\frac{2\hbar u_s}{\xi}$ (un vecteur d'onde supérieur à $2/\xi$) ne contribuent quasiment pas au couplage. Ce vecteur d'onde de coupure est d'autant plus grand que l'extension du centre de masse est petite, ce qui est assez intuitif : plus la boîte quantique est petite, et plus grande est l'extension du paramètre ξ dans l'espace réel, et donc plus petits seront les vecteurs d'onde de phonons auxquels il pourra se coupler dans l'espace réciproque. Pour les grandes boîtes quantiques, le vecteur d'onde de coupure est petit, et le couplage peu important : les répliques phonons sont donc très proches de la raie zéro phonon.

La figure 4.7 montre que le couplage aux phonons est d'autant plus intense et plus "visible" que la distance de localisation du centre de masse de l'exciton est petite. Cette dépendance du couplage aux phonons acoustiques en fonction du confinement a également été démontrée par P. Borri *et al.* [99] au moyen d'expériences de mélange à 4 ondes.

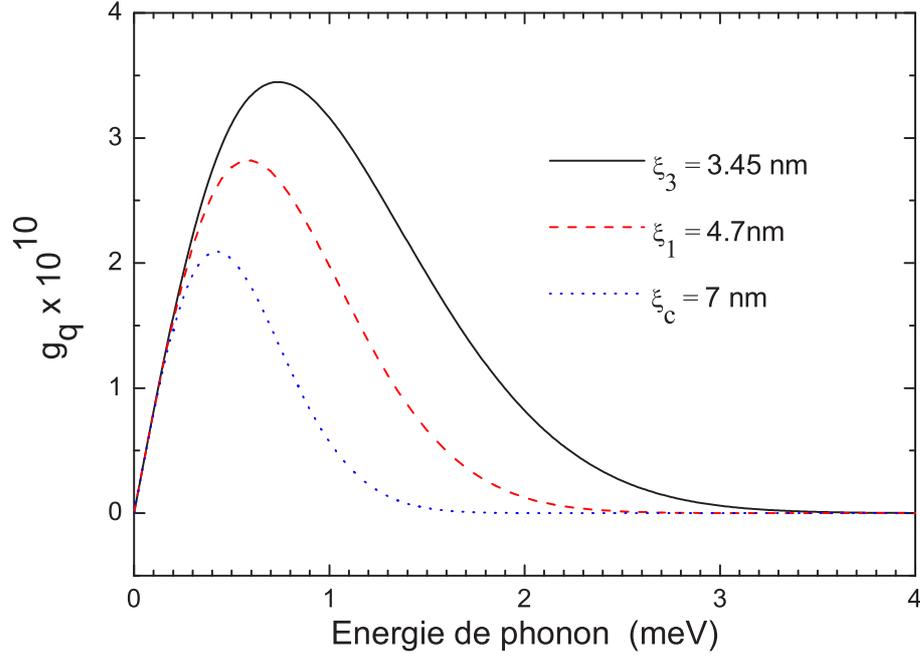


FIG. 4.7 – Constante de couplage $g(q)$ en fonction de l'énergie des phonons pour différentes valeurs du paramètre de localisation ξ .

4.1.3 Etude de la raie zéro-phonon

Origine de la largeur de raie zéro-phonon Dans le modèle de Huang-Rhys, la largeur de la raie zéro-phonon est nulle. La contribution à la luminescence de hauteur W_p doit donc être élargie par une fonction spectrale. Si la largeur de raie zéro-phonon et sa dépendance en température ont été rapportées dans de nombreux articles [94, 95, 96, 97, 98, 99] aucun modèle n'existe à ce jour à notre connaissance pour rendre compte de l'élargissement linéaire observé à basse température. Dans les boîtes quantiques, la discrétisation des états devrait donner lieu à un élargissement thermoactivé et non linéaire. L'origine de cette dépendance n'est donc pas entièrement comprise. Takagahara propose 2 processus microscopiques à l'origine d'un déphasage pur pour la raie zéro-phonon [100], dont l'importance relative dépend du régime du confinement. Dans le régime de confinement faible des boîtes quantiques de GaAs, ces 2 processus sont d'égale importance :

- L'un des processus consiste en une transition assistée par les phonons acoustiques vers les autres niveaux de la boîte quantique suivis d'un retour à l'état excitonique initial. Ces processus font intervenir les éléments non-diagonaux du couplage exciton-phonon. Nous les avons négligés en considérant un seul niveau excitonique. Le traitement d'une interaction exciton-phonon non-diagonale dans une boîte quantique d'InAs a été repris par Muljarov [101]. Cette hypothèse induit effectivement un élargissement de la raie zéro-phonon car l'état exciton habillé du nuage de phonons est instable. Ce calcul donne des ordres de grandeurs corrects pour certaines expériences menées sur des boîtes quantiques d'InAs [159], mais dans d'autres cas [103] y compris le nôtre, le phénomène de transition virtuelle est trop faible pour expliquer quantitativement les élargissements observés
- Dans l'autre processus, l'exciton reste tout le temps dans le même état quantique. La fluctuation temporelle de la phase est due par exemple à la présence soudaine d'une charge dans l'environnement de la boîte quantique ou la présence d'un champ magnétique local.

Nous allons montrer qu'effectivement l'environnement électrostatique de la boîte quantique joue un rôle crucial dans l'élargissement homogène de l'exciton. Il influence également le profil spectral de la raie zéro-phonon, comme nous allons le voir dans le paragraphe ci-dessous.

Profils de la raie zéro-phonon Le profil de la raie zéro-phonon dépend des boîtes quantiques considérées. A 4K, la raie centrale est la raie zéro-phonon. Pour les petites boîtes quantiques (QD1 et QD3), le profil de la raie zéro-phonon est lorentzien, pour la boîte quantique QDc de l'échantillon à grandes boîtes quantiques, ce profil est gaussien

Dans sa thèse, A. Jankovic [105] montre que l'environnement électrostatique fluctuant de la boîte quantique peut engendrer, sous certaines conditions un profil gaussien. Partant d'un émetteur à 2 niveaux isolé, il calcule la perturbation par effet Stark sur l'énergie d'émission engendrée par la présence de pièges dans l'environnement de la boîte quantique. Les pièges peuvent être occupés ou vides, et c'est la dynamique du piégeage ou dépiégeage qui va conditionner le profil spectral. En effet, la raie se déplace en énergie avec des temps caractéristiques qui sont ceux du peuplement et dépeuplement des pièges.

- Lorsque le piégeage et dépiégeage se produisent sur des temps longs devant le temps de vie radiatif, la raie d'émission se déplace en énergie avec le temps caractéristique du peuplement et dépeuplement des pièges. Si ces déplacements se produisent plus vite que le temps d'acquisition de la mesure, le spectre obtenu a un profil qui correspond à la distribution statistique des décalages Stark. Si cette statistique est gaussienne, le spectre est gaussien.

Si ces déplacements se produisent sur des temps supérieurs au temps d'acquisition, on résout dans le temps les différentes raies d'émission; on observe alors de la diffusion spectrale, comme par exemple dans les nanocristaux [162], ou les boîtes quantiques II-VI [85].

- Dans le cas de pièges dont la dynamique est rapide par rapport au temps de vie radiatif de l'exciton (ou du biexciton), la raie d'émission est au contraire homogène, lorentzienne et sa largeur est déterminée par la morphologie des pièges et leur dynamique.

Nous interprétons alors les différents profils observés de la façon suivante : Supposons que la dynamique de piégeage/dépiégeage soit comparable dans les 2 échantillons avec un temps caractéristique t_p plus court que les temps de vie des excitons dans les petites boîtes quantiques mais plus long que dans les grandes boîtes quantiques, c'est-à-dire tel que :

$$t_x(\text{grandesBQ}) < t_p < t_x(\text{petitesBQ}) \quad (4.14)$$

Alors, la différence d'ordre de grandeur entre les temps de vie radiatifs excitoniques entre les 2 échantillons explique la différence de profil spectral obtenu : pour les grandes boîtes quantiques, nous sommes dans le cas où la dynamique des pièges est lente devant le temps de vie radiatif de l'exciton, d'où un élargissement gaussien. Dans les petites boîtes quantiques (donc les forces d'oscillateurs plus faibles), nous sommes dans le cas où la dynamique de pièges est rapide devant celle de l'exciton, d'où un élargissement lorentzien.

Les différents profils de raie zéro-phonon observés sont donc la signature de l'interaction coulombienne des excitons avec l'environnement électrostatique, avec des dynamiques différentes, résultant des forces d'oscillateur différentes.

Evolution de la largeur de la raie zéro-phonon avec la puissance et la température Afin de mieux comprendre le rôle de l'environnement électrostatique, nous avons étudié la largeur de la raie zéro-phonon en fonction de la puissance et de la température.

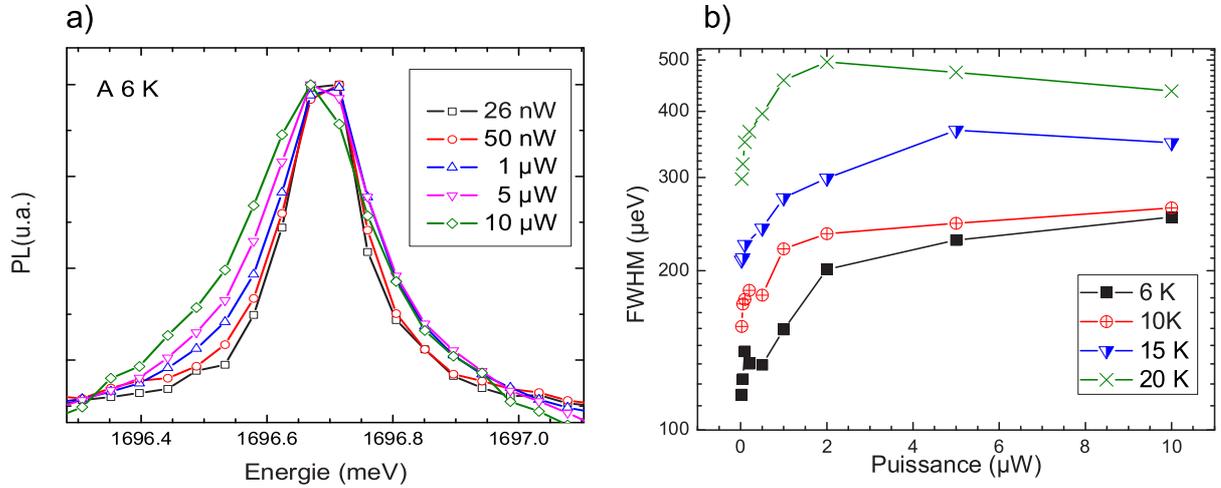


FIG. 4.8 – a-Spectres de l'exciton de la boîte quantique QD1 à différentes puissances d'excitation. Les maxima ont tous été rapportés à la même hauteur, afin de mettre en évidence l'élargissement croissant avec la puissance. b- Largeurs de la raie zéro-phonon en fonction de la puissance d'excitation à différentes températures entre 6 et 20K.

Nous avons effectué des mesures de la largeur de raie zéro-phonon sur la boîte quantique QD1, entre 6K et 20K, c'est-à-dire aux températures où la largeur à mi-hauteur de la raie excitonique est imposée par la raie zéro-phonon et n'inclut pas les ailes de phonons. La figure 4.8a représente les raies d'émission à 4K superposées pour différentes puissances d'excitation. On observe que la largeur de raie augmente avec la puissance. La figure 4.8b résume l'évolution des largeurs de raie zéro-phonon en fonction de la puissance à différentes températures. Pour toutes les températures, on observe un élargissement croissant avec la puissance d'excitation. Comme nous avons expliqué l'élargissement par des fluctuations de l'environnement électrostatique, il est assez naturel d'en déduire que les fluctuations augmentent avec le nombre de porteurs photocréés (donc la puissance d'excitation). La saturation que nous observons à forte puissance s'explique alors par l'occupation de tous les pièges disponibles autour de la boîte quantique. Il est également possible que la dynamique des pièges soit modifiée par la puissance d'excitation.

A puissance donnée, on observe sur la figure 4.8b également un élargissement croissant avec la température : la température augmente la dynamique de piégeage/dépiégeage, c'est-à-dire les fluctuations de l'environnement électrostatique. On comprend alors qu'à basse température, et en excitation résonante ou quasi-résonante, des largeurs de raie limitées radiativement aient pu être observées [18, 87, 88], puisque dans ce cas, l'environnement électrostatique de la boîte quantique n'est pas activé.

4.1.4 Calcul de la raie d'émission excitonique à différentes températures.

Connaissant le profil spectral de la raie zéro-phonon, nous pouvons calculer les spectres d'émission excitonique aux différentes températures.

La température intervient dans le nombre d'occupation moyen des phonons. Une augmentation

de la température a 2 conséquences : d'une part, elle fait apparaître des raies nouvelles, d'autre part elle entraîne la diminution de la raie zéro phonon ; la force d'oscillateur de la raie centrale se répartit progressivement sur les raies correspondant aux transitions avec changement du nombre de phonons.

A basse température, $n_{\mathbf{q}} \ll 1$ donc la probabilité W_p pour que la transition implique p phonons, est proportionnelle à $(\frac{n_{\mathbf{q}}+1}{n_{\mathbf{q}}})^{\frac{p}{2}} \approx (\frac{1}{n_{\mathbf{q}}})^{\frac{p}{2}}$. Cette probabilité est donc bien plus grande pour $p > 0$ (côté basse énergie de la transition) que pour $p < 0$ (côté haute énergie de la transition). La recombinaison radiative de l'exciton assistée par l'émission de phonons est beaucoup plus probable que la recombinaison radiative assistée par l'absorption de phonons. Quand la température augmente, les processus d'émission et d'absorption tendent à s'égaliser. Le profil spectral devient alors symétrique.

Pour le calcul, le continuum de phonons est discrétisé par une distribution de N modes effectifs de phonons q_i , chaque mode q_i interagissant avec une constante de couplage effective :

$$g(q_i) = \int_{q_i - \frac{\delta q}{2}}^{q_i + \frac{\delta q}{2}} g(q) dq \quad (4.15)$$

où δq est le pas de discrétisation choisi. Les calculs sont effectués avec $N = 12$ et en prenant en compte les transitions impliquant 0,1 ou 2 phonons.

Les largeurs de raie zéro-phonon sont lues à basse température sur la figure 4.5. A plus haute température, elle sont extrapolée d'après l'ajustement linéaire d'évolution de la largeur à basse température. La figure 4.9 présente le résultat des calculs sur la boîte quantique QD1, à différentes températures, avec un paramètre $\xi_1 = 4.7 \text{ nm}$. L'accord expérience/calcul est excellent. Le modèle reproduit l'asymétrie à basse température ainsi que l'importance des bandes latérales.

Un calcul similaire est mené pour modéliser la boîte quantique QDc. Afin de rendre compte des données, nous devons prendre $\xi_c = 7 \text{ nm}$. Cette boîte quantique est donc plus grande que QD1, qui est la boîte quantique la plus grande que nous ayons étudiée sur l'échantillon à petites boîtes quantiques (voir chapitre 3). La figure 4.10 montre la comparaison des calculs aux spectres expérimentaux pour la boîte quantique QDc à différentes températures. Le calcul pour la boîte quantique QD3 est présenté dans la section suivante, car nous allons traiter simultanément l'exciton et le biexciton.

En résumé, nous avons, dans cette première partie, mis en évidence le couplage de l'exciton (et du biexciton) aux phonons acoustiques. Les raies d'émission sont en conséquence constituées d'une raie centrale dite à zéro-phonon et de bandes latérales ou ailes de phonons. Nous avons montré que le couplage aux phonons est d'autant plus important que le centre de masse de l'exciton est localisé. Le couplage est donc plus important pour les petites boîtes quantiques que pour les grandes boîtes quantiques ; il résulte en un élargissement avec la température plus conséquent dans les petites boîtes quantiques.

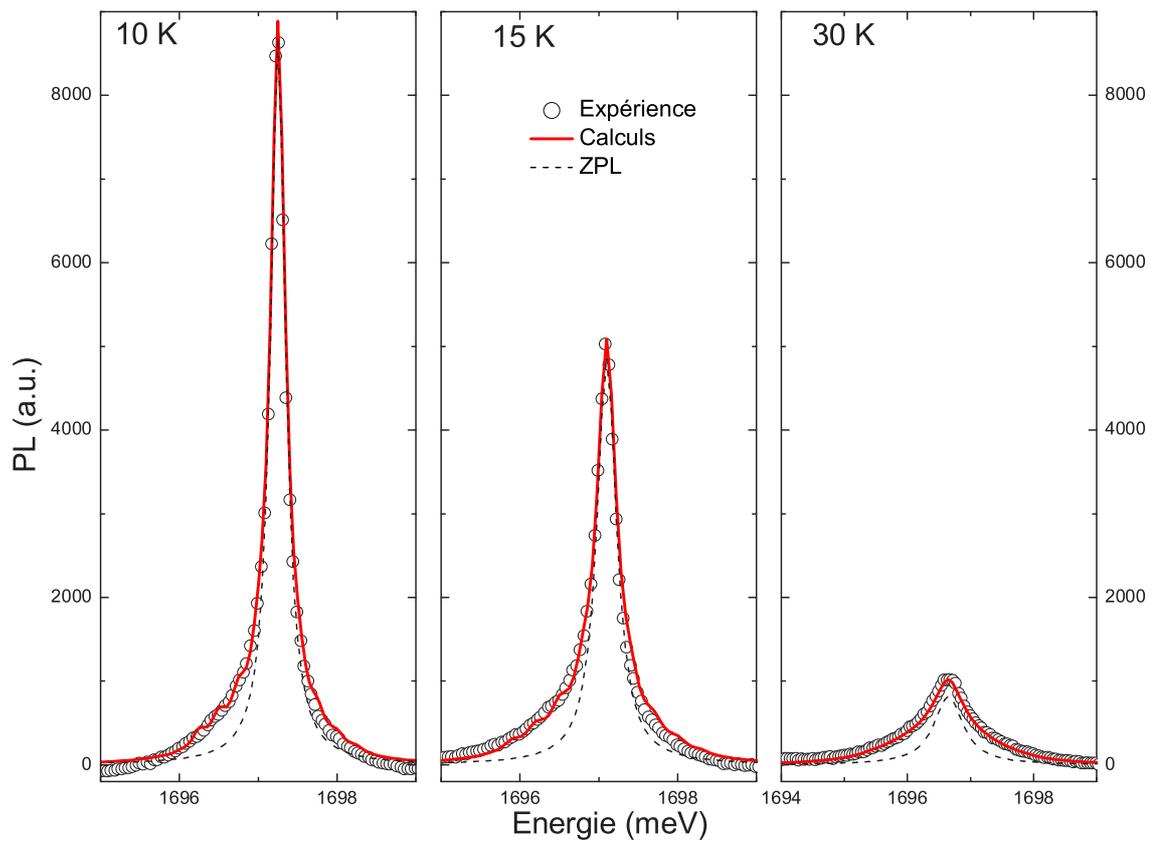


FIG. 4.9 – Spectres de photoluminescence à différentes températures sur la boîte quantique QD1. Symboles : expérience. Traits pleins : calcul et raie zéro-phonon.

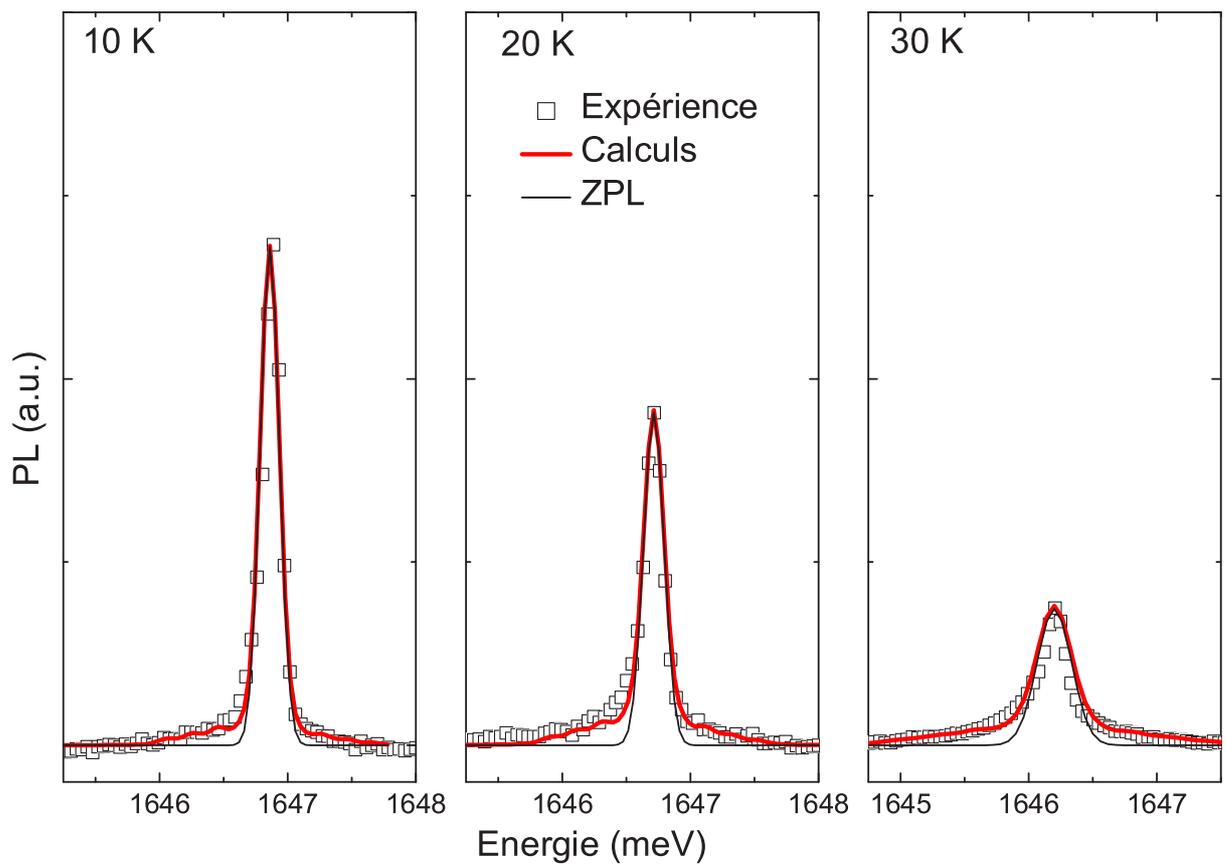


FIG. 4.10 – Spectres de photoluminescence pour l'exciton de la boîte quantique QDc. Symboles : expérience. Trait épais : calcul. Trait fin : raie zéro-phonon.

4.2 Effet de l'environnement sur la raie d'émission biexcitonique

Cette partie est consacrée à l'étude des processus d'interaction du biexciton avec l'environnement. Dans le paragraphe 4.2.1, nous nous intéressons au couplage du biexciton aux phonons acoustiques. L'interaction coulombienne du biexciton avec l'environnement électrostatique de la boîte quantique étudiée au paragraphe 4.2.2 nous permettra d'interpréter et de modéliser l'épaule apparaissant sur la partie basse énergie de la raie du biexciton. L'ensemble de cette étude a été effectué sur l'échantillon à petites boîtes quantiques ; comme nous l'avons vu au chapitre 3, nous n'observons pas de biexciton sur l'échantillon à grandes boîtes quantiques.

4.2.1 Interaction avec les phonons acoustiques

Afin de modéliser le spectre de la boîte quantique QD3, nous devons étendre le modèle de Huang-Rhys au biexciton. L'élément de matrice du couplage du biexciton aux phonons acoustiques est donné par :

$$M_{\mathbf{q}}^{XX} = \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho u_s V}} (D_c \langle XX | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{e1}} + e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{e2}} | XX \rangle - D_v \langle XX | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{h1}} + e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{h2}} | XX \rangle) \quad (4.16)$$

La fonction d'onde du biexciton $|XX\rangle$ est basée sur le produit symétrisé de 2 excitons [104] :

$|XX\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X_{e1,h1}\rangle |X_{e2,h2}\rangle + |X_{e1,h2}\rangle |X_{e2,h1}\rangle)$, en négligeant l'interaction coulombienne [104]. Nous trouvons alors :

$$\langle XX | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{e1}} | XX \rangle = \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\right) \langle X | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{e1}} | X \rangle + (\text{échange}) \quad (4.17)$$

où les termes d'échange sont de la forme

$$(\langle X_{e1,h1} | \langle X_{e2,h2} |) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{e1}} (|X_{e1,h2}\rangle |X_{e2,h1}\rangle) \quad (4.18)$$

et représentent l'échange de trous (ou d'électrons) entre les 2 excitons. Finalement, l'élément de matrice du couplage est donné par : $M_q^{XX} = 2M_q^X + M_q^{exchange}$, avec un terme d'échange que nous ne savons pas calculer.

D'autre part, nous devons prendre en compte le fait que l'état final est maintenant un état excitonique, couplé aux phonons acoustiques. En conséquence, la probabilité que la transition optique implique p phonons est :

$$W_p^q = \left(\frac{n_{\mathbf{q}} + 1}{n_{\mathbf{q}}}\right)^{p/2} f(|M_q^{eff}|^2) \quad (4.19)$$

où $M_q^{eff} = M_q^{XX} - M_q^X$ [83]. Comme nous ne savons pas calculer le terme d'échange, nous sommes réduits à des conjectures :

- Si le terme d'échange est négligeable, la contribution aux ailes de phonons au spectre du biexciton est identique à celle de l'exciton.
- Si le couplage biexciton-phonons est le même que le couplage exciton-phonons, alors $M_q^{eff} = 0$, et on n'observe aucune aile de phonons sur le biexciton.
- Si le terme d'échange est non-nul, sa contribution s'ajoute au couplage.

La figure 4.11 présente le calcul des raies d'émission de l'exciton et du biexciton de la boîte quantique QD3 pour un paramètre $\xi_3 = 3.45 \text{ nm}$. Comme on peut le constater, le calcul reproduit très bien le spectre expérimental de l'exciton ; en revanche, on voit qu'en négligeant le terme d'échange, on ne reproduit pas la forme du biexciton. La contribution aux bandes latérales n'est pas assez importante. Néanmoins, un autre effet se conjugue au couplage avec les phonons pour modifier la forme de raie du biexciton. Il s'agit de l'interaction coulombienne entre le biexciton et les paires électrons-trou dans l'environnement de la boîte quantique, que nous étudions dans le prochain paragraphe. Nous allons montrer qu'en additionnant les 2 effets, on reproduit correctement la forme de raie du biexciton.

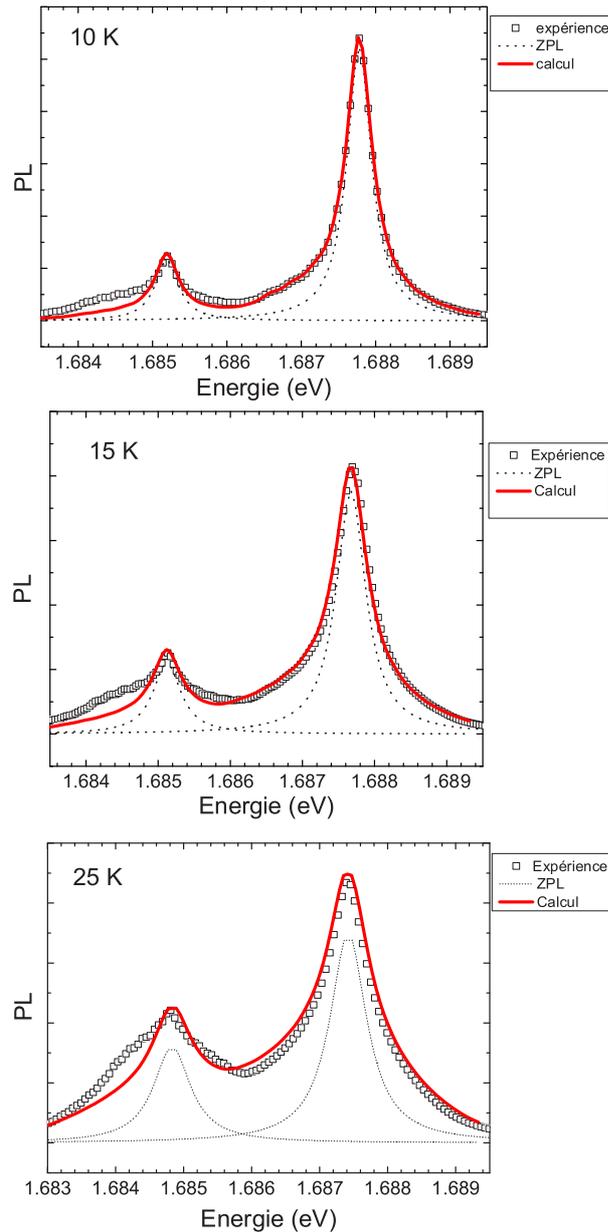


FIG. 4.11 – Spectres de photoluminescence pour l'exciton et le biexciton de la boîte quantique QD3. Symboles : expérience. Pointillés : raies zéro-phonon. Trait plein : calcul.

4.2.2 Interaction coulombienne du biexciton avec l'environnement électrostatique

Observations en excitation pulsée Rappelons les observations faites au chapitre 3 : nous avons noté sur les images fournies par la caméra à balayage de fente une émission à basse énergie du biexciton aux temps courts. Des spectres pris à différents instants sont représentés sur la figure 4.12, l'origine des temps étant fixée par l'impulsion laser. On observe que l'énergie d'émission

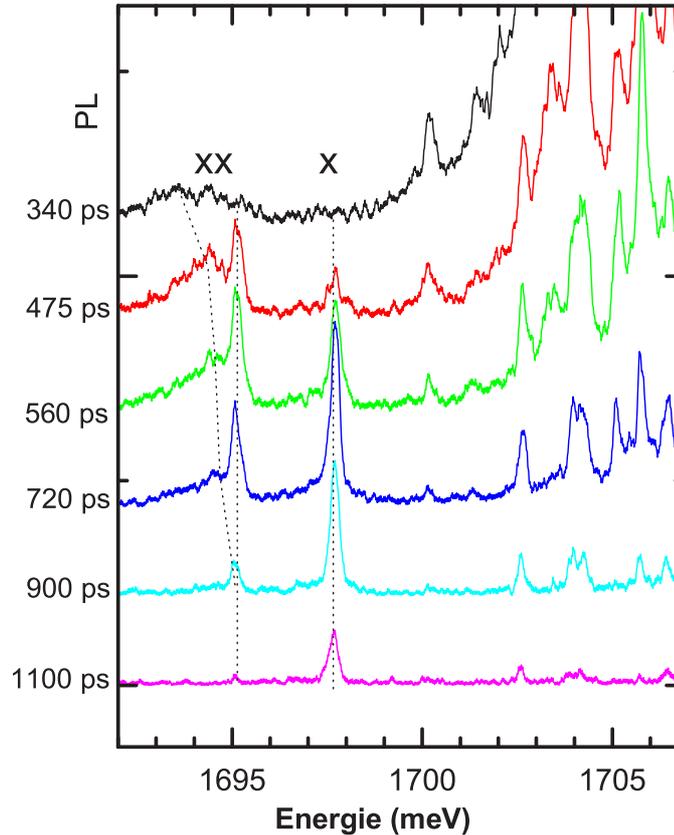


FIG. 4.12 – Spectres mesurés à différents instants après l'impulsion laser, décalés verticalement par souci de visibilité. Ces instants sont indiqués en face de chaque spectre à gauche de l'axe des ordonnées.

du biexciton augmente avec le temps jusqu'à l'énergie $E = 1695 \text{ meV}$, qui est également l'énergie d'émission du biexciton à plus basse puissance. Simultanément, l'intensité relative du puits quantique diminue. Nous relierons le décalage d'énergie du biexciton à la diminution du nombre de paires électrons-trous dans l'environnement de la boîte quantique. En effet, les paires électrons-trous présentes dans le puits quantique, et plus particulièrement dans l'environnement de la boîte quantique sont en interaction coulombienne avec les 2 excitons de la boîte quantique. Cette interaction coulombienne perturbe l'énergie d'émission, d'autant plus que les paires électron-trou sont nombreuses. Ainsi, au fur et à mesure que les paires électron-trou du puits quantique se recombinent radiativement, l'énergie du biexciton se décale vers l'énergie non-perturbée $E = 1695 \text{ meV}$. Notons ici que nous appelons toujours biexciton la particule émise en présence d'un autre exciton dans la boîte quantique et de paires électron-trous dans l'environnement. Certains auteurs préfèrent utiliser le terme multi-exciton. Le dernier biexciton (pour ces auteurs, c'est le seul à être appelé biexciton) est émis à l'énergie non-perturbée car il n'y a plus de paires électron-trou dans l'entourage de la boîte

quantique. L'exciton est émis après le (dernier) biexciton ; son énergie n'est donc pas perturbée par l'environnement coulombien.

Mesures en excitation continue Afin d'approfondir cette explication, nous avons complété notre étude par des mesures sous excitation continue, et avec un double spectromètre d'1 m apportant une meilleure résolution ($100 \mu eV$).

Commençons par une interprétation qualitative des raies de luminescence. Nous considérons le système formé par la boîte quantique et son environnement immédiat, c'est-à-dire les états du puits quantique qui l'alimentent. Nous supposons que la boîte quantique n'a qu'un seul état discret localisé. Cette supposition est justifiée par le fait que nous n'observons pas d'états excités en PLE. Nous notons n le nombre d'excitons injectés dans le système considéré. Dès que $n \geq 3$, le système

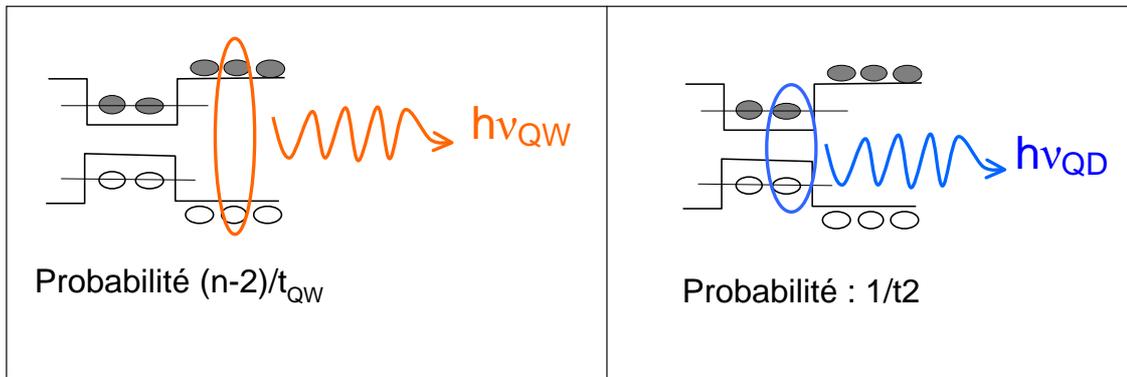


FIG. 4.13 – Représentation schématique des 2 voies de désexcitation du système comprenant n paires électron-trou. A gauche : par le puits quantique. A droite : par le biexciton de la boîte quantique.

a 2 voies possibles de désexcitation, schématisées sur la figure 4.13 :

- soit une des $n - 2$ paires électron-trou du puits quantique se recombine radiativement à l'énergie du puits quantique. Le taux de recombinaison de ces $n - 2$ paires est $\frac{n-2}{t_{QW}}$
- soit le biexciton se recombine radiativement en présence des $n - 2$ paires électron-trou dans le puits quantique. Le taux de recombinaison du biexciton est $\frac{1}{t_2} = \frac{1}{t_{xx}}$

Les temps t_{xx} et t_{qw} pour la boîte quantique QD2 ont été mesurés à la caméra à balayage de fente et valent : $t_{xx} = 100 ps$ et $t_{qw} = 160 ps$. Comme t_{xx} est plus court que t_{QW} , le second processus n'est pas négligeable pour $n=3,4$ voire 5 et 6. En conséquence, la recombinaison du biexciton a également lieu pour un nombre de porteurs $n > 2$. L'interaction coulombienne avec l'environnement induit alors un décalage vers les basses énergies (un redshift) de l'énergie d'émission du biexciton. Un tel redshift a été observé dans les boîtes quantiques d'InAs en présence d'excitons sur les niveaux excités de la boîte quantiques [108]. Les auteurs expliquent l'abaissement de l'énergie du biexciton par la somme des termes d'échange électron-électron et trou-trou.

Modélisation Nous allons dériver un modèle simple pour rendre compte du profil spectral du biexciton sous excitation continue, dans lequel l'interaction coulombienne avec l'environnement électrostatique est supposée proportionnelle au nombre de paires électron-trou présentes dans l'environnement de la boîte quantique. On désigne par p_n la probabilité que le système comprenne n

paires électron-trou. Les équations de taux qui régissent l'évolution de ces probabilités sont :

$$\frac{dp_n}{dt} = \frac{p_{n+1}}{t_{n+1}} + \frac{p_{n-1}}{t_a} - p_n \left(\frac{1}{t_n} + \frac{1}{t_a} \right) \quad (4.20)$$

où t_n désigne le temps de recombinaison de la n ème paire électron-trou. La capture étant supposée instantanée dans ce modèle, la configuration définie par un exciton dans la boîte quantique et des paires électron-trou dans le puits quantique, n'est pas prise en compte. $1/t_a$ désigne le taux d'injection de paires électron-trou dans le système. t_a est proportionnel à la puissance incidente P . On note $1/A$ le facteur de proportionnalité :

$$t_a = \frac{P}{A} \quad (4.21)$$

La solution stationnaire de ces équations est :

$$p_n = \frac{\prod_{i=1}^n t_i}{t_a^n} \text{ pour } n \neq 0 \quad (4.22)$$

$$p_0 = 1 - \sum_{i=1}^{\infty} p_i \quad (4.23)$$

Nous connaissons toutes les valeurs de t_n grâce aux mesures faites à la caméra à balayage de fente. On note $t_1 = t_x$ et $t_2 = t_{xx}$. Nous pouvons calculer toutes les probabilités p_n en fonction de P/A . Il reste à déterminer A . Pour cela, on considère le rapport :

$$\frac{I_{xx}}{I_x} = \frac{\sum_{i=1}^{\infty} \frac{p_i}{t_{xx}}}{\frac{p_1}{t_x}} \quad (4.24)$$

Ce rapport est une fonction de A . Les données expérimentales nous permettent d'obtenir ce rapport

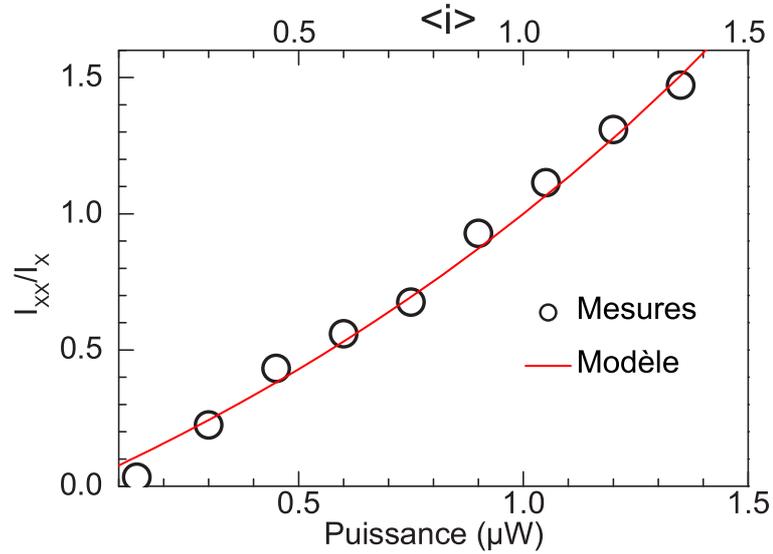


FIG. 4.14 – Rapport d'intensité entre le biexciton et l'exciton de la boîte quantique QD2. Symboles : données expérimentales. Trait : Calcul du rapport d'après l'équation 4.24.

pour chaque puissance. L'ajustement des points expérimentaux permet alors de déterminer A . La figure 4.14 représente ce rapport pour la boîte quantique QD2 ainsi que le calcul basé sur l'équation 4.24.

Le signal de photoluminescence en continu est la somme de la recombinaison des n excitons, $n = 1..∞$:

- Pour $n = 1$, la recombinaison radiative a lieu à l'énergie excitonique E_x avec une intensité $I_x = \frac{p_1}{t_x}$;
- Pour $n = 2$, la recombinaison radiative a lieu à l'énergie biexcitonique E_{xx} avec une intensité $I_{xx} = \frac{p_2}{t_{xx}}$;
- Pour $n > 2$, il y a recombinaison soit à l'énergie du puits avec une intensité $I_{QW}(n) = \frac{p_n(n-2)}{t_{QW}}$ soit à l'énergie perturbée du biexciton avec une intensité $I_{xx}(n) = \frac{p_n}{t_{xx}}$

Nous supposons que la perturbation de l'énergie d'émission du biexciton, due à l'interaction coulombienne avec les paires électron-trou dans l'environnement de la boîte quantique est simplement proportionnelle à ce nombre de paires, c'est-à-dire que :

$$E_{xx}(n) = E_{xx} - (n - 2)d_1 \quad (4.25)$$

où d_1 est un paramètre ajustable qui représente le déplacement énergétique induit par la présence d'une paire électron-trou dans l'environnement. Les calculs numériques sur les boîtes quantiques d'InAs montrent que cette hypothèse est correcte tant que le nombre de paires n'est pas trop grand [107], ce qui est le cas ici, puisque nous nous limitons à $n < 6$.

On obtient à ce stade pour chaque valeur de n l'énergie et l'intensité du pic d'émission correspondant. La figure 4.15 montre le résultat de ce calcul en prenant $d_1 = 0.7 \text{ meV}$. Les temps t_x , t_{xx} et t_{QW} mesurés sont respectivement de 150, 100, et 160 ps pour la boîte quantique QD2. On obtient un histogramme des probabilités, et des intensités pour $n = 1$ à 5. Chaque pic est ensuite

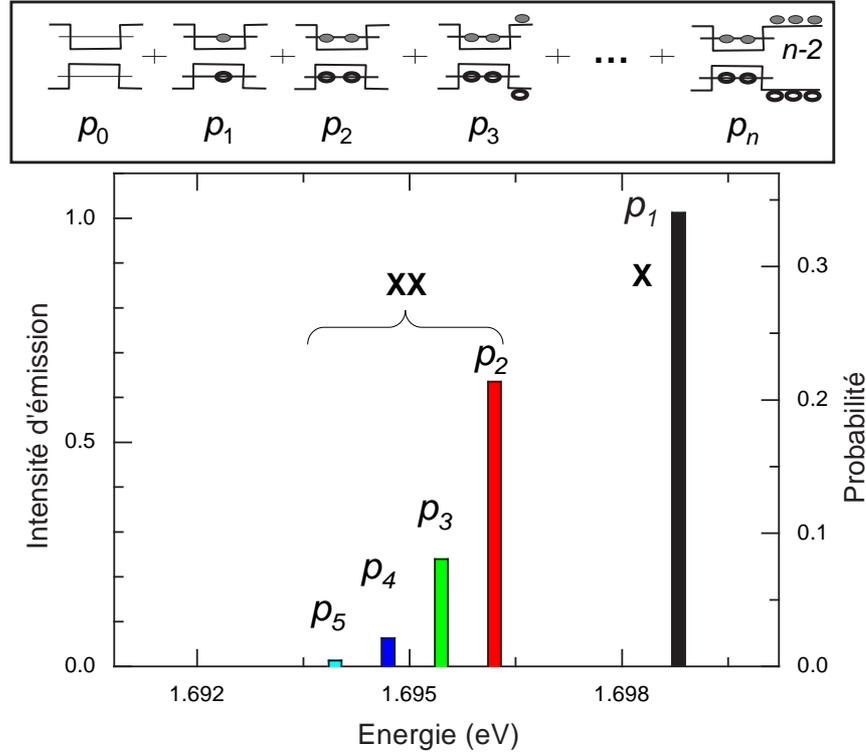


FIG. 4.15 – Histogramme des intensités et des probabilités pour les nombres d'occupation $i = 1$ à 5 contribuant au signal de photoluminescence pour la boîte quantique QD2.

élargi par une même fonction spectrale normée. Cette fonction est la somme de 2 lorentziennes,

une pour la raie zéro-phonon et une pour reproduire les ailes de phonons, dans l'hypothèse où le terme d'échange est négligeable, c'est-à-dire que la contribution aux ailes de phonons au spectre du biexciton est identique à celle de l'exciton. La figure 4.16 montre le résultat du calcul complet. La somme des contributions montre un bon accord avec l'expérience.

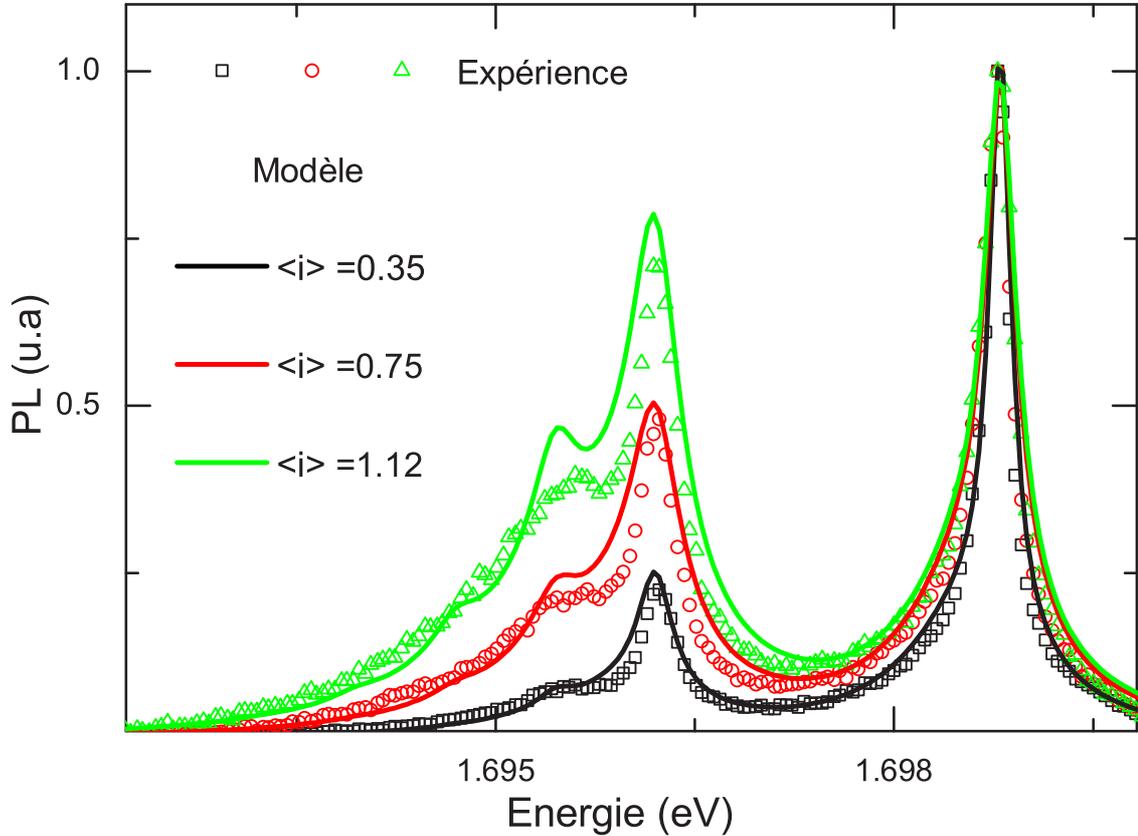


FIG. 4.16 – Spectres d'émission à 3 puissances différentes obtenus sur la boîte quantique QD2 pour laquelle $t_x = 150 \text{ ps}$, $t_{xx} = 100 \text{ ps}$ et $t_{QW} = 160 \text{ ps}$. Symboles : spectres mesurés. Traits : spectres calculés.

Cette aile apparaît sur toutes les boîtes quantiques, avec plus ou moins d'importance selon les boîtes quantiques. Qualitativement, on comprend que l'aile a d'autant plus d'importance que le temps de vie du biexciton est court par rapport au temps de vie du puits quantique. Dans les boîtes quantiques de GaAs, le puits quantique a toujours un temps de déclin d'environ 160 ps . En revanche, les temps de déclin varient selon les biexcitons. Parmi les différents boîtes quantiques de l'échantillon, nous pouvons faire varier le paramètre t_{xx}/t_{QW} à travers t_{xx} . Il est donc intéressant de faire ce calcul sur la boîte quantique étudiée au chapitre 3, puisque le temps de vie radiatif de son biexciton est le plus court de l'ensemble des mesures. La figure 4.17 représente les spectres d'émission mesurés et calculés de l'exciton et du biexciton de la boîte quantique QD1, pour laquelle nous avons mesuré $t_x = 110 \text{ ps}$, $t_{xx} = 60 \text{ ps}$ et $t_{qw} = 160 \text{ ps}$. La comparaison des figures 4.16 et 4.17 à des puissances comparables ($\langle i \rangle = 0.75$, $\langle i \rangle = 0.65$) et ($\langle i \rangle = 1.12$, $\langle i \rangle = 1.16$) montre qu'à nombre moyen de porteurs égal, l'aile basse énergie est plus importante sur la boîte quantique QD1 et que sur la boîte quantique QD2.

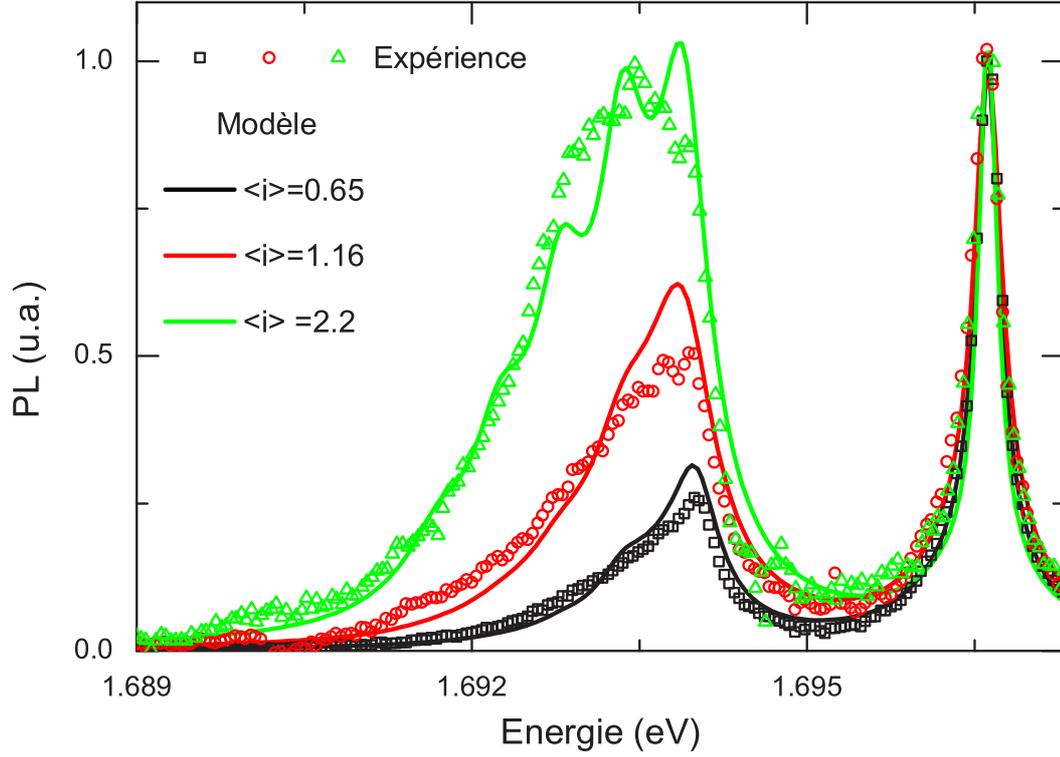


FIG. 4.17 – Spectres d'émission de la boîte quantique QD1 pour laquelle $t_x = 110 ps$, $t_{xx} = 60 ps$ et $t_{QW} = 160 ps$ à 3 puissances différentes. Symboles : spectres mesurés. Traits : spectres calculés.

Pour confirmer l'importance du paramètre t_{xx}/t_{QW} , nous allons étudier le cas des boîtes quantiques d'InAs, dans lesquelles on n'observe généralement pas d'épaule sur le biexciton, ou seulement à très forte puissance. Pour cela, nous devons adapter le modèle puisque ces boîtes quantiques ont plusieurs niveaux excités. On considère alors que les états excités et la couche de mouillage constituent un réservoir pour les boîtes quantiques, dont le temps de vie radiatif moyen est de $200 ps$. Les temps de vie t_x et t_{xx} sont pris respectivement égaux à $1.5 ns$ et $750 ps$ [106]. La figure 4.18 résume le calcul de la fraction de l'épaule sur l'intensité biexcitonique totale pour les 2 boîtes quantiques de GaAs identifiées par le temps de vie de leur biexciton et pour les boîtes quantiques d'InAs. Cette fraction est donnée par le rapport :

$$\frac{I_{aile}}{I_{xx}} = \frac{\sum_{j=3}^{\infty} p_j}{\sum_{j=2}^{\infty} p_j} \quad (4.26)$$

- La comparaison des 2 boîtes quantiques de GaAs montre qu'à puissance égale, le biexciton dont le temps de vie radiatif est le plus court présente un épaulement plus important.
- La comparaison des boîtes quantiques de GaAs au calcul effectué avec les paramètres des boîtes quantiques d'InAs montre qu'à puissance égale, l'épaulement est plus important dans les boîtes quantiques de GaAs.

Considérons le rapport $\frac{p_3}{p_2} = \frac{t_3}{t_a}$ dans les 2 types de boîtes quantiques :

- Pour les boîtes quantiques de GaAs, $t_3 \simeq t_2$ car $t_{xx} \ll t_{QW}$. Par conséquent, $\frac{p_3}{p_2} \simeq \frac{p_2}{p_1}$.
- Pour les boîtes quantiques d'InAs, au contraire $t_3 \ll t_2$, donc $\frac{p_3}{p_2} \ll \frac{p_2}{p_1}$.

Les fonctions $p_n(n)$ décroissent beaucoup plus vite avec n dans les boîtes quantiques d'InAs. L'observation de l'aile basse énergie n'a été, pour cette raison, rapportée qu'à très forte puissance dans

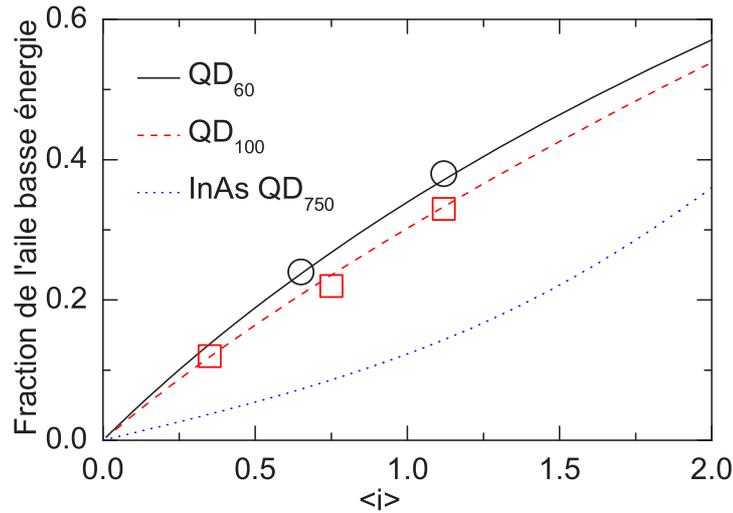


FIG. 4.18 – Fraction de l'aile basse énergie du biexciton dans la raie biexcitonique. Symboles : mesures sur les boîtes quantiques de GaAs. Traits : calcul pour les boîtes quantiques de GaAs et d'InAs. Les boîtes quantiques sont identifiées dans la légende avec le temps de vie du biexciton en indice, en picosecondes.

ces boîtes quantiques [108, 109], pour des nombres moyens d'occupation $\langle i \rangle$ de 4 à 13. Récemment Santori *et al.* ont rapporté l'observation d'un épaulement à basse énergie sur le biexciton dans des boîtes quantiques d'InGaAs ayant un temps de vie relativement court ($t_x = 479 ps$ et $t_{xx} = 316 ps$) [110]. Dans les premières études sur boîtes quantiques de GaAs, une raie "satellite" de la raie biexcitonique est observée par Brunner *et al.* [1].

En conclusion, cette analyse montre que la manifestation de l'interaction coulombienne sur la raie biexcitonique est une signature des boîtes quantiques dont le temps de vie radiatif est court devant le réservoir qui les alimente en excitation non-résonante. L'environnement électrostatique de la boîte quantique joue alors un rôle crucial sur son émission, y compris à faible puissance d'excitation.

Synthèse : Nous avons étudié les processus de déphasage dans les 2 types de boîtes quantiques et observé des différences significatives. Nous avons notamment constaté des élargissements des raies d'émission avec la température beaucoup moins importants dans les grandes boîtes quantiques (0.25 meV à 30 K) que dans les petites boîtes quantiques (plus d'1 meV à 30 K). Comme nous le verrons au chapitre 6, le dédoublement de Rabi attendu à la résonance est inférieur à 0.5 meV et l'accord spectral est obtenu par variation de la température jusqu'aux environs de 35 K. L'élargissement spectral observé exclut donc les petites boîtes quantiques mais confirme l'intérêt des grandes boîtes quantiques pour l'observation du régime de couplage fort.

Chapitre 5

Cavités à haut facteur de qualité et petit volume effectif : les microdisques

Un microdisque est un disque de taille micrométrique et d'épaisseur comparable à $\frac{\lambda}{n}$, où n est l'indice du disque et vaut environ 3 dans les semi-conducteurs III-V. Dans les microdisques, il existe des modes confinés à la périphérie, appelés modes de galerie (WGM pour Whispering Gallery Modes), que nous allons étudier en détails dans ce chapitre. Après un bref rappel historique (partie 5.1), nous nous attachons à donner une description théorique des modes de microdisques (partie 5.2). Nous décrivons dans la partie 5.3 les étapes technologiques de fabrication des microdisques. Dans cette partie, nous décrivons également la fabrication de nouveaux microdisques, développés pendant cette thèse, à savoir les microdisques sur pied d'oxyde d'aluminium (AlOx) [112]. Ensuite, nous présentons l'étude des performances des cavités réalisées en terme de facteur de qualité et de volume effectif dans la partie 5.4. Enfin, nous nous intéressons dans la partie 5.5 au système boîtes quantiques naturelles de GaAs en microdisques. Après avoir déterminé les paramètres optimaux pour l'observation du couplage fort, nous consacrons le dernier paragraphe à l'étude du diagramme de rayonnement des modes de galerie.

5.1 Bref rappel historique

Les modes de galerie tirent leur nom de leur observation dans le domaine des ondes acoustiques, et plus précisément la propagation d'ondes sur la paroi intérieure d'un dôme. D'anciennes églises en Egypte témoignent de leur utilisation à une fin bien particulière : la confession de malades atteints de la lèpre. Le confesseur chuchotait ses confessions contre le mur d'une salle voûtée, tandis que le confesseur recueillait ses paroles à l'autre extrémité de la salle voûtée, sans crainte de contagion. Aujourd'hui, on pourra tenter l'expérience, sans soutane et en parfaite santé, dans des lieux aussi divers que la cathédrale St-Paul de Londres, le Museum de Cincinnati, Grand Central Station à New-York, ou plus simplement dans le métro parisien. C'est Lord Rayleigh qui baptise les modes de galerie (whispering gallery modes en anglais) en 1877 dans un livre sur la Théorie du son [113], précisément pour expliquer la particularité du dôme de la cathédrale de St-Paul de Londres, où 2 personnes peuvent converser en murmurant quel que soit leur éloignement.

En électromagnétisme, le problème de la diffusion de la lumière par une sphère de dimension grande devant la longueur d'onde, résolu par Mie en 1908, met en évidence de fines résonances associées aux modes de galerie ou résonances de Mie [114]. Rayleigh interprète en 1912 ces résonances

comme les interférences constructives de l'onde électromagnétique qui, après réflexion totale interne sous incidence quasi-rasante dans la sphère, revient en phase avec elle-même au bout d'un tour [115].

L'étude expérimentale des modes de galerie dans le domaine optique a été initiée, d'abord avec des micro-gouttelettes en chute libre [116] et des microbilles solides [117], puis des microdisques dans les polymères [118] et dans des matériaux semi-conducteurs [119, 120, 121, 122]. Grâce à leur fort indice, les semi-conducteurs permettent d'obtenir un confinement de la lumière sur des volumes beaucoup plus faibles. L'ordre de grandeur du confinement atteint dans les microdisques est de l'ordre de quelques $(\frac{\lambda}{n})^3$ alors que dans les microsphères de silice, par exemple, le confinement typique est de $10^4 (\frac{\lambda}{n})^3$ [125, 126]. Les microdisques ont alors été utilisés pour constituer la cavité de lasers semi-conducteurs. En conséquence, les progrès technologiques dans la réalisation des microdisques ont été mus par la quête constante d'abaissement du seuil laser, qui est conditionné par l'augmentation du facteur de qualité.

Intrinsèquement capables de confiner très fortement la lumière, une fois technologiquement dotés de grands facteurs de qualité, les modes de galerie sont devenus des candidats idéaux pour les expériences d'électrodynamique quantique en cavité. Dans le régime de couplage faible, les microdisques ont permis d'obtenir une exaltation de l'émission spontanée avec un facteur 20 [130, 48]. Nous allons voir comment leurs performances peuvent être utilisées pour observer des effets d'EDQC en régime de couplage fort.

5.2 Description théorique des modes de galerie dans les microdisques

Dans cette partie, nous commençons par donner une image simple, basée sur l'optique géométrique, des différents modes qui s'établissent dans les microdisques, et notamment des modes de galerie. Puis, nous formalisons le confinement tridimensionnel en vue d'obtenir la dépendance spatiale du champ électro-magnétique des modes de galerie, leur spectre, leur facteur de qualité intrinsèque et leur volume effectif.

5.2.1 Approche simplifiée de l'optique géométrique

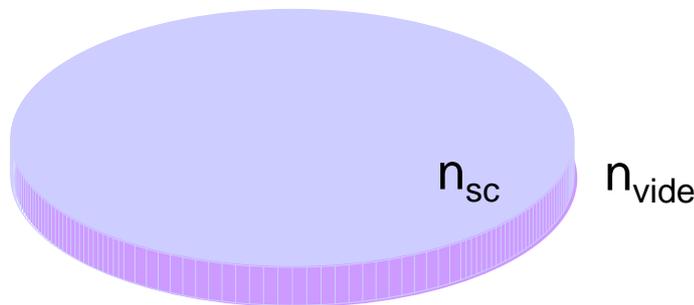


FIG. 5.1 – Schéma d'un disque d'indice n_{sc} plongé dans un milieu d'indice $n_{vide} < n_{sc}$.

Considérons un microdisque semi-conducteur d'indice n_{sc} , entouré par l'air ou le vide, d'indice $n_{vide} < n_{sc}$. Le contraste d'indice confine le champ électromagnétique à la fois dans la direction verticale et dans la direction radiale. Le contraste d'indice dans la direction verticale donne lieu à une cavité Fabry-Pérot de faible finesse. Dans la direction radiale, une approche simplifiée d'optique

géométrique suffit pour mettre en évidence 2 types de modes, en fonction de l'angle d'incidence sur la périphérie intérieure du microdisque :

- Les modes rayonnants dont l'angle d'incidence est inférieur à l'angle critique du dioptré vide/semi-conducteur $\chi_c = \arcsin \frac{n_{vide}}{n_{sc}}$, où n_{sc} désigne l'indice du microdisque. Ces modes sortent du disque par réfraction.
- Les modes guidés dits modes de galerie, dont l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique du dioptré vide/semi-conducteur $\chi_c = \arcsin \frac{n_{vide}}{n_{sc}}$. A chaque rebond, l'angle d'incidence est conservé, du fait de l'invariance par rotation de la cavité. Le trajet du photon repasse donc un grand nombre de fois au même point. Le retour en phase après chaque tour donne lieu à des interférences constructives. Dans la limite des incidences rasantes, la condition de retour en phase s'écrit : $2\pi n_{sc}R = p\lambda_0$, où p est un entier et λ_0 la longueur d'onde dans le vide. Cette équation est formellement analogue à la condition de résonance d'un Fabry-Pérot, avec une longueur de cavité aller-retour qui vaut ici $2\pi n_{sc}R$.

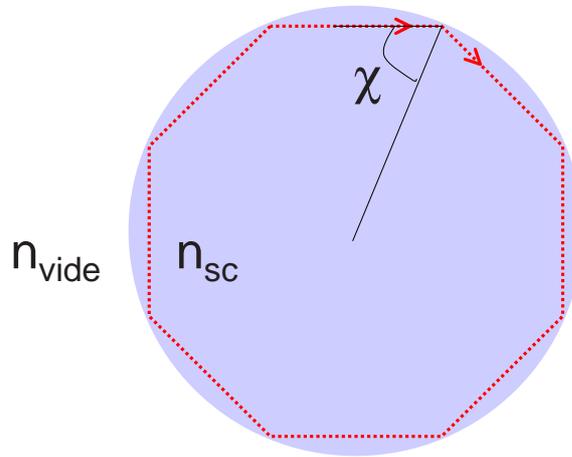


FIG. 5.2 – Réflexion d'un rayon d'angle d'incidence $\chi > \arcsin \frac{n_{vide}}{n_{sc}}$ dans le disque d'indice n_{sc} plongé dans un milieu d'indice $n_{vide} < n_{sc}$.

5.2.2 Description des modes de galerie

Considérons une cavité à microdisque dont la hauteur est petite devant le diamètre et de l'ordre de la longueur d'onde dans le matériau. Le champ est fortement confiné verticalement par le contraste d'indice entre le semiconducteur et le vide. On peut donc découpler les dépendances suivant z et les dépendances suivant r et θ . Nous considérerons le problème en 2 temps :

- Verticalement le disque est un guide d'onde plan infini diélectrique à 3 couches. Les solutions bien connues de ce guide se décomposent en ondes TE (avec un champ électrique transverse) et des ondes avec un champ magnétique transverse (TM). De la résolution ce problème, on extrait l'indice effectif vu par le champ électrique confiné dans le milieu d'indice le plus fort.
- On résout ensuite l'équation de propagation du champ électromagnétique dans le plan du disque, sachant que l'indice vu par le champ est l'indice effectif qu'on vient de calculer.

Guide d'onde infini Considérons le guide plan infini représenté sur la figure 5.3, constitué par une couche de semiconducteur d'indice n_{sc} dans le vide d'indice n_{vide} . Nous traiterons

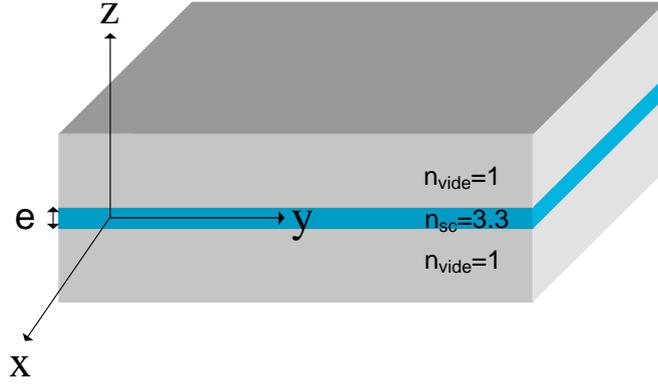


FIG. 5.3 – Représentation schématique du guide plan infini formé par une couche d'indice $n_{sc} = 3.3$ d'épaisseur e dans un milieu d'indice $n_{vide} = 1$.

ce problème dans le système de coordonnées cartésiennes (x,y,z) . Nous cherchons à résoudre les équations de Maxwell suivantes :

$$\vec{\nabla} \cdot (\varepsilon \vec{E}) = 0 \quad (5.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\mu_0 \vec{H}) = 0 \quad (5.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -j\omega\mu\vec{H} \quad (5.3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = +j\omega\varepsilon\vec{E} \quad (5.4)$$

où $\varepsilon(\vec{r}) = \varepsilon_0 n^2(\vec{r})$.

En coordonnées cartésiennes, les 2 dernières équations donnent lieu au système de 6 équations suivantes :

$$\frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} = -j\omega\mu H_x \quad (5.5)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} = -j\omega\mu H_y \quad (5.6)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = -j\omega\mu H_z \quad (5.7)$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} = j\omega\varepsilon E_x \quad (5.8)$$

$$\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} = j\omega\varepsilon E_y \quad (5.9)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = j\omega\varepsilon E_z \quad (5.10)$$

Avec les conventions de la figure 5.3, les solutions recherchées se propagent selon y donc les champs varient en $e^{j(\omega t - k_y y)}$, où ω est la pulsation et k_y la constante de propagation libre selon y . Nous cherchons donc les champs \vec{E} et \vec{H} sous la forme suivante :

$$\vec{E} = (E_{ox}\vec{e}_x + E_{oy}\vec{e}_y + E_{oz}\vec{e}_z)e^{j(\omega t - k_y y)} \quad (5.11)$$

$$\vec{H} = (H_{ox}\vec{e}_x + H_{oy}\vec{e}_y + H_{oz}\vec{e}_z)e^{j(\omega t - k_y y)} \quad (5.12)$$

où $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$ sont les vecteurs unitaires de la base du repère cartésien. Puisque le système est invariant par translation selon x et y , les amplitudes E_{ox}, E_{oy}, E_{oz} et H_{ox}, H_{oy}, H_{oz} ne dépendent a

priori que de z . On obtient alors des expressions pour E_x, E_z, H_x, H_z en fonction des composantes longitudinales E_y et H_y :

$$E_x = \frac{-j\omega\mu}{k^2 - k_y^2} \frac{\partial H_y}{\partial z} \quad (5.13)$$

$$E_z = \frac{-jk_y}{k^2 - k_y^2} \frac{\partial E_y}{\partial z} \quad (5.14)$$

$$H_x = \frac{+j\omega\varepsilon}{k^2 - k_y^2} \frac{\partial E_y}{\partial z} \quad (5.15)$$

$$H_z = \frac{-jk_y}{k^2 - k_y^2} \frac{\partial H_y}{\partial z} \quad (5.16)$$

où $k = \omega\sqrt{\mu\varepsilon}$ est la constante de propagation dans le milieu. De plus, des équations de Helmholtz :

$$\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} = \vec{0} \quad (5.17)$$

$$\nabla^2 \vec{H} + k^2 \vec{H} = \vec{0} \quad (5.18)$$

il s'ensuit que :

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} = -(k^2 - k_y^2) \vec{E} \quad (5.19)$$

$$\frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial z^2} = -(k^2 - k_y^2) \vec{H} \quad (5.20)$$

Deux types de solutions sont possibles pour ce système : des ondes avec un champ électrique transverse (TE) et des ondes avec un champ magnétique transverse (TM) :

1- Le champ électrique TE ne possède qu'une composante non-nulle : E_x . Le champ magnétique aura alors 2 composantes non-nulles : H_y et H_z . L'équation (1.15) devient alors :

$$\boxed{\frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} + (k^2 - k_y^2) E_x = 0} \quad (5.21)$$

2- Le champ magnétique des ondes TM ne possède qu'une composante non-nulle ; il s'agit de H_x . Le champ électrique aura alors 2 composantes non-nulles : E_y et E_z . L'équation (1.16) devient alors :

$$\boxed{\frac{\partial^2 H_x}{\partial z^2} + (k^2 - k_y^2) H_x = 0} \quad (5.22)$$

Solutions de l'équation d'onde Les 2 équations obtenues sont les équations de propagation des composantes H_x et E_x avec les expressions :

$$\begin{aligned} E_x &= E_{0x}(z) e^{j(\omega t - k_y y)} \\ H_x &= H_{0x}(z) e^{j(\omega t - k_y y)} \end{aligned}$$

Elles sont formellement analogues à l'équation de Schrödinger obtenue dans le cadre du puits de potentiel unidimensionnel. Le problème se résout de manière similaire, le guide d'onde 3 couches constituant un puits de potentiel rectangulaire de hauteur finie pour le champ électromagnétique. Nous allons détailler le raisonnement pour les ondes TE et simplement donner le résultat pour les ondes TM, pour lesquelles le raisonnement est rigoureusement identique. Les solutions de l'équation 5.21 auront 2 formes possibles :

- La première est constituée des solutions oscillantes $E_x = \exp(jk_z z)$ si $k^2 > k_y^2$ où la constante de propagation est $k_z = \sqrt{k^2 - k_y^2}$
- La seconde correspond à des ondes évanescentes $E_x = e^{-\alpha_z z}$ si $k^2 < k_y^2$ où la constante d'atténuation est $\alpha_z = \sqrt{k_y^2 - k^2}$

Les solutions qui nous intéressent sont celles qui sont oscillantes dans le guide et amorties à l'extérieur. Leur champ E_x s'écrit donc :

$$Ae^{+\alpha_z z} \quad si \quad -\infty < z < -\frac{e}{2} \quad (5.23)$$

$$Be^{+jk_z z} + Ce^{-jk_z z} \quad si \quad -\frac{e}{2} < z < \frac{e}{2} \quad (5.24)$$

$$De^{-\alpha_z z} \quad si \quad \frac{e}{2} < z < \infty \quad (5.25)$$

où $\alpha_z = \sqrt{k_y^2 - k_{vide}^2}$ et $k_z = \sqrt{k_{sc}^2 - k_y^2}$ sont les constantes de propagation libre dans les milieux vide et semiconducteur d'indice n_{vide} et n_{sc} . Le guide étant symétrique par rapport à $z = 0$, il est possible d'identifier 2 types de solutions : les solutions paires (dont le champ électrique est symétrique autour de $z = 0$) et les solutions impaires (dont le champ électrique est antisymétrique autour de $z = 0$.) Le champ électrique E_x des modes pairs s'écrit :

$$Ae^{+\alpha_z(z+\frac{e}{2})} \quad si \quad -\infty < z < -\frac{e}{2} \quad (5.26)$$

$$B \cos(k_z z) \quad si \quad -\frac{e}{2} < z < \frac{e}{2} \quad (5.27)$$

$$Ae^{-\alpha_z(z-\frac{e}{2})} \quad si \quad \frac{e}{2} < z < \infty \quad (5.28)$$

Le champ électrique E_x des modes impairs s'écrit :

$$-Ae^{+\alpha_z(z+\frac{e}{2})} \quad si \quad -\infty < z < -\frac{e}{2} \quad (5.29)$$

$$B \sin(k_z z) \quad si \quad -\frac{e}{2} < z < \frac{e}{2} \quad (5.30)$$

$$Ae^{-\alpha_z(z-\frac{e}{2})} \quad si \quad \frac{e}{2} < z < \infty \quad (5.31)$$

Conditions de continuité aux interfaces

- La composante tangentielle du champ électrique (E_x) doit être continue en $z = \pm\frac{e}{2}$ donc :

$$A = B \cos\left(\frac{k_z e}{2}\right) \quad (5.32)$$

pour les modes pairs et

$$A = B \sin\left(\frac{k_z e}{2}\right) \quad (5.33)$$

pour les modes impairs.

- La composante tangentielle du champ magnétique (c'est-à-dire H_y) doit être continue en $z = \pm\frac{e}{2}$:

$$\frac{1}{\mu_{sc}} \frac{\partial E_{x,sc}}{\partial z} \Big|_{z=\pm\frac{e}{2}} = \frac{1}{\mu_{vide}} \frac{\partial E_{x,vide}}{\partial z} \Big|_{z=\pm\frac{e}{2}} \quad (5.34)$$

d'où

$$A\alpha_z = Bk_z \sin\left(\frac{k_z e}{2}\right) \quad (5.35)$$

pour les modes pairs et

$$-A\alpha_z = Bk_z \cos\left(\frac{k_z e}{2}\right) \quad (5.36)$$

En regroupant les 2 conditions pour chaque parité, on obtient 2 équations transcendantes :

$$\frac{\alpha_z e}{2} = \frac{k_z e}{2} \tan \frac{k_z e}{2} \text{ pour les modes pairs} \quad (5.37)$$

$$-\frac{\alpha_z e}{2} = \frac{k_z e}{2} \cot \frac{k_z e}{2} \text{ pour les modes impairs} \quad (5.38)$$

Ces équations transcendantes ne peuvent se résoudre analytiquement. Il faut remarquer que :

$$\left(\frac{\alpha_z e}{2}\right)^2 + \left(\frac{k_z e}{2}\right)^2 = \frac{(k_y^2 - k_{vide}^2)e^2}{4} + \frac{(k_{sc}^2 - k_y^2)e^2}{4} \quad (5.39)$$

$$= (n_{sc}^2 - n_{vide}^2) \left(\frac{k_0 e}{2}\right)^2 \quad (5.40)$$

$$= R^2 \quad (5.41)$$

où $k_0 = \omega\sqrt{\mu_0\varepsilon_0}$ est la constante de propagation dans le vide. L'équation obtenue décrit un cercle de rayon R dans le plan (α_z, k_z) . Les solutions des équations transcendantes seront donc les intersections entre ce cercle et les tangentes et co-tangentes des expressions 5.37 et 5.38 respectivement pour chaque parité. La résolution graphique se fait à l'aide de graphes comme celui de la figure 5.4, sur lequel nous avons représenté les courbes d'équations $y = x \tan x$ et $y = x \cot x$ dans le quart de plan $(k_z e/2, \alpha_z e/2)$, ainsi que le cercle d'équation $x^2 + y^2 = R^2$. Pour chaque intersection des courbes avec le quart de cercle, on obtient un couple de solutions (k_z, α_z) , ce qui permet ensuite de calculer l'indice effectif n_{eff} .

Comme on peut le voir sur la figure 5.4, selon la valeur de $R = \frac{k_0 e}{2} \sqrt{n_{sc}^2 - n_{vide}^2}$, donc selon la valeur du saut d'indice et selon le rapport entre l'épaisseur de la couche centrale sur la longueur d'onde dans le vide, un nombre limité de modes peut s'établir. Ce nombre augmente avec l'épaisseur. La limite d'existence de ce mode correspond à l'intersection sur l'axe des abscisses, soit :

$$\frac{k_z e}{2} = \frac{p\pi}{2} \quad (5.42)$$

La condition d'existence d'un mode p pour des structures ayant une épaisseur e est la suivante :

$$\frac{e}{\lambda_0} \geq \frac{p}{2\sqrt{n_{sc}^2 - n_{vide}^2}} \quad (5.43)$$

Pour une épaisseur donnée e et pour un indice de semiconducteur de l'ordre de 3, on retiendra qu'il existe $6\frac{\lambda_0}{e}$ modes, où λ_0 est la longueur d'onde dans le vide.

Pour chaque mode p , le nombre de lobes est $p + 1$. Les modes pairs ont donc un ventre au centre de la structure et les modes impairs un noeud. Notre objectif étant de maximiser l'interaction avec le champ électro-magnétique, seuls les modes pairs nous intéresseront par la suite (et en particulier le mode fondamental $p = 0$), car nous plaçons la couche active au centre de la structure.

Nous arrivons à ce stade à l'objectif de cette partie : connaître l'indice effectif du guide plan. Ayant déterminé k_z et α_z , la constante de propagation selon y est donnée par

$$k_y = \sqrt{k_{sc}^2 - k_z^2} = \sqrt{k_{vide}^2 + \alpha_z^2} \quad (5.44)$$

comprise entre k_{vide} et k_{sc} . L'indice effectif est défini par la relation

$$\boxed{k_y = n_{eff} k_0}$$

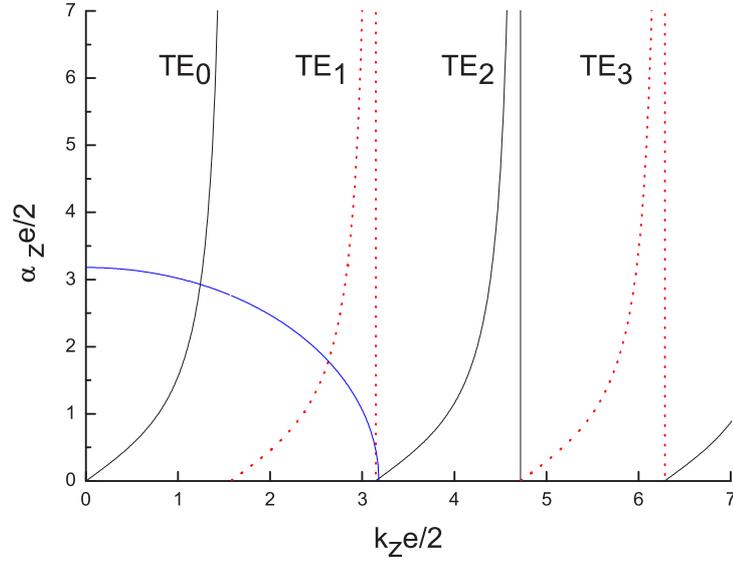


FIG. 5.4 – Illustration de la résolution graphique des équations transcendentes pour $e = 250 \text{ nm}$, $k_0 = 8.10^6 \text{ m}^{-1}$ et $n_{sc} = 3.3$. Les traits pleins représentent les modes pairs et les pointillés les modes impairs. Le couple solution (k_z, α_z) est déduit des coordonnées de l'intersection entre les courbes et le quart de cercle de rayon $R = \frac{k_0 e}{2} \sqrt{n_{sc}^2 - n_{vide}^2}$.

Modes TM La même démarche aboutit à l'équation transcendente :

$$\frac{\alpha_z e}{2} = \frac{\varepsilon_{vide}}{\varepsilon_{sc}} \frac{k_z e}{2} \tan \frac{k_z e}{2} \quad (5.45)$$

pour les modes pairs et

$$\frac{-\alpha_z e}{2} = \frac{\varepsilon_{vide}}{\varepsilon_{sc}} \frac{k_z e}{2} \cot \frac{k_z e}{2} \quad (5.46)$$

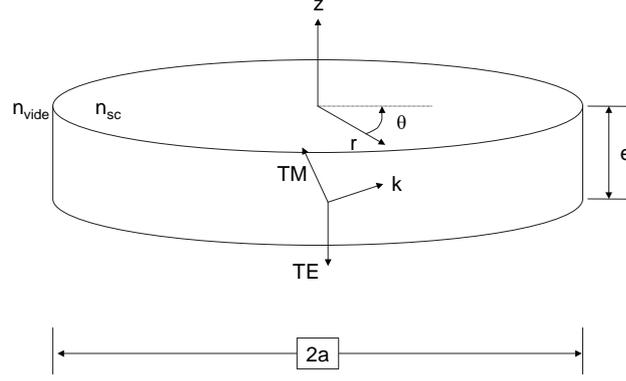
pour les modes impairs. La seule différence avec les modes TE réside dans le rapport de permittivités.

Dans le plan Nous avons d'abord considéré le microdisque comme un guide d'ondes électromagnétiques infini à 3 couches confinant verticalement le champ électro-magnétique, séparant ainsi les modes en polarisations TE et TM (cette séparation devient une approximation pour les microdisques de diamètre fini). Nous avons obtenu un indice effectif pour le microdisque dans la direction z et la dépendance du champ électromagnétique en z . Pour le mode fondamental $p = 0$, cette dépendance en z est en $\cos(\frac{\omega}{c} \sqrt{n_{sc}^2 - n_{eff}^2} z)$. Nous allons maintenant considérer le confinement dans les 2 autres directions de l'espace, dû au contraste d'indice dans le plan entre le vide et le disque d'indice n_{eff} et de rayon a .

L'équation de propagation à résoudre a la même forme pour les champ électrique \vec{E} et magnétique \vec{H} :

$$\Delta \vec{F} + n_{eff}^2 \frac{\omega^2}{c^2} \vec{F} = \vec{0} \quad (5.47)$$

où \vec{F} désigne le champ électrique ou magnétique. Le système présentant une invariance par rotation

FIG. 5.5 – Structure schématique du microdisque de rayon a et d'épaisseur e .

autour de z , les coordonnées les plus adaptées sont les coordonnées cylindriques (r, θ, z) , avec les conventions de la figure 5.5. L'équation 5.47 se ré-écrit en coordonnées cylindriques sous la forme :

$$\left(\frac{d^2}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{1}{r^2} \frac{d^2}{d\theta^2} + \frac{d^2}{dz^2} + n_{eff}^2 \frac{\omega^2}{c^2} \right) \vec{F} = 0 \quad (5.48)$$

Avec l'approximation que nous avons faite de séparer les modes en polarisations TE (E_r, E_ϕ, H_z) et TM (H_r, H_ϕ, E_z), l'équation 5.48 devient une équation scalaire en F_z , où F_z désigne H_z (resp E_z) pour les modes TE (resp. TM). L'équation 5.47 est séparable en r et θ et z [153]. La solution se présente comme un produit de 3 fonctions en r , θ et z :

$$F_z = R(r)\Theta(\theta)Z(z) \quad (5.49)$$

L'équation 5.48 se scinde alors en 3 équations :

$$\frac{d^2\theta}{d\theta^2} + m^2\Theta = 0 \quad (5.50)$$

$$\frac{d^2Z}{dz^2} + \frac{\omega^2}{c^2}(n^2 - n_{eff}^2)Z = 0 \quad (5.51)$$

$$\frac{d^2R}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dR}{dr} + \left(\frac{\omega^2 n_{eff}^2}{c^2} - \frac{m^2}{r^2} \right) R = 0 \quad (5.52)$$

La première équation se résout analytiquement : $\Theta(\theta) = e^{im\theta}$. La forme de la solution résulte de l'invariance par rotation. Il s'agit en effet de la fonction propre de l'opérateur moment cinétique $L_z : e^{im\theta}$, où m -valeur propre de L_z , est un entier, appelé ici nombre azimuthal du mode de galerie.

La seconde est l'équation du guide plan que nous avons résolue au paragraphe précédent.

La dernière équation permet de connaître la dépendance radiale du champ électromagnétique. Les solutions de cette équation sont les fonctions de Bessel dans le disque ($r \leq a$) et de Hankel à l'extérieur du disque ($r > a$). Comme discuté dans la référence [152], la fonction solution de Hankel peut être approchée par une exponentielle décroissante, d'où [132] :

$$R(r) = J_m\left(\frac{\omega n_{eff} r}{c}\right) \text{ pour } r \leq a \quad (5.53)$$

$$R(r) = J_m\left(\frac{\omega n_{eff} r}{c}\right) e^{-\alpha(r-a)} \text{ pour } r \geq a \quad (5.54)$$

avec la constante d'atténuation $\alpha = \frac{\omega}{c} \sqrt{n_{eff}^2 - n_{vide}^2}$.

Le nombre azimuthal m est déterminé, à (ω, a, n_{eff}) fixés, par les conditions de continuité en $r = a$, ce qui conduit à l'équation transcendante [152] :

$$\frac{\omega}{c} n_{eff} J_{m+1} \left(\frac{\omega n_{eff} a}{c} \right) = \left(\frac{m}{a} + \eta \alpha \right) J_m \left(\frac{\omega n_{eff} a}{c} \right) \quad (5.55)$$

où $\eta = \frac{n^2}{n_{vide}^2}$ pour les modes TE et $\eta = 1$ pour les modes TM.

Pour chaque valeur de m , cette équation a une infinité de solutions $\omega_{m,n}$, que l'on indexe par le nombre radial n . Le profil radial du champ correspondant présente alors $n - 1$ noeuds dans la direction radiale. Une approximation couramment faite, dite approximation des modes de galerie, consiste à considérer que $R(a) = 0$ pour $r \geq a$.

Profil d'intensité La figure 5.6 résume les profils d'intensité en fonction des 3 variables z , θ et r . Sur cette figure, nous avons représenté à titre d'exemple les dépendances en intensité pour le mode $TE(p = 0, m = 17, n = 2)$ dans un disque d' $1 \mu m$ de rayon et de $250 nm$ d'épaisseur :

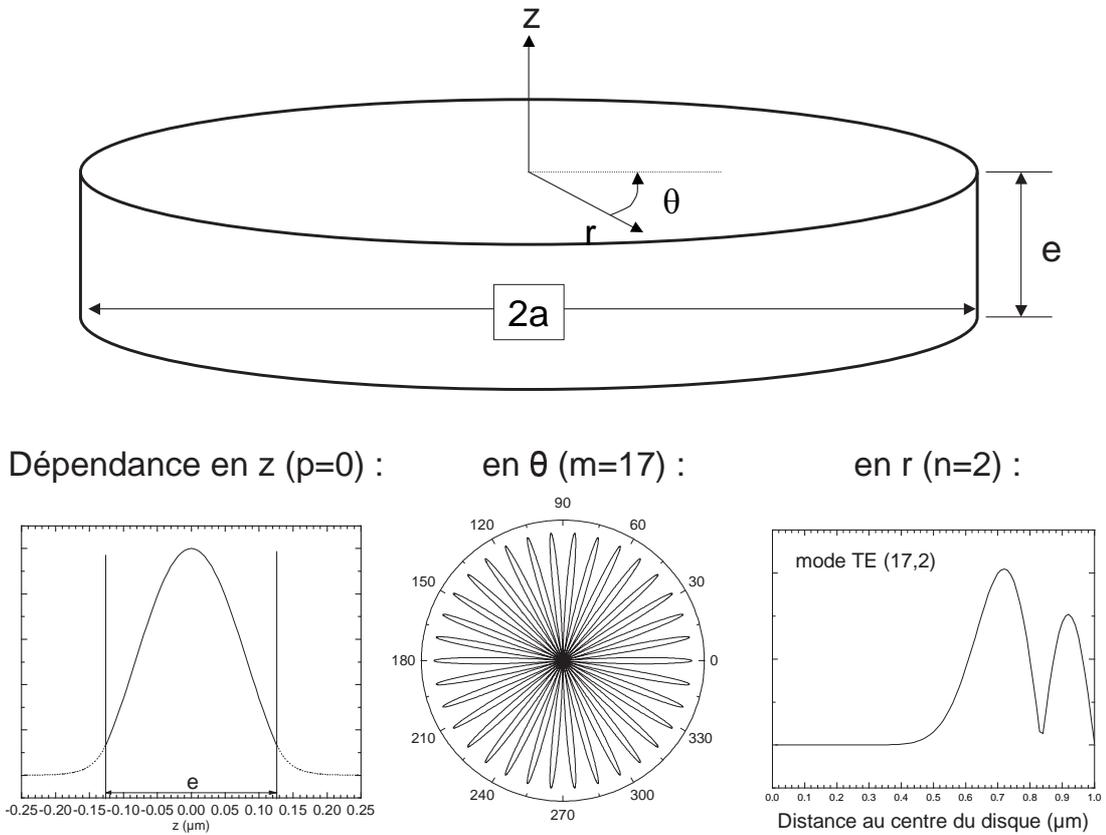


FIG. 5.6 – Représentation des dépendances de l'intensité du champ électrique en fonctions des coordonnées cylindriques dans un disque d' $1 \mu m$ de rayon et de $250 nm$ d'épaisseur pour le mode $TE(p = 0, m = 17, n = 2)$.

Le champ est caractérisé par 3 nombres quantiques : p, m, n .

- p , lié à la coordonnée z , correspond au numéro du mode TE ou TM considéré. Le mode fondamental correspond à $p = 0$. La dépendance de l'intensité du champ est en $\cos^2 k_z z$ à l'intérieur du disque. A l'extérieur, elle est exponentiellement décroissante en $e^{-2\alpha_z z}$. Les coefficients k_z et α_z sont les solutions des équations transcendentes, précédemment calculées.

- Le nombre m , attaché à la coordonnée θ correspond au nombre de zéros divisé par 2 dans la direction orthoradiale. L'intensité varie comme $\cos^2 m\theta$, avec $2m$ noeuds sur un tour (sur le schéma $m = 17$).
- n , lié à la coordonnée r correspond au nombre de zéros le long du rayon. En r , la dépendance est donnée par $J_m(rn_{eff}\frac{\omega_{m,n}}{c})^2$ à l'intérieur du disque et par $J_m(\frac{\omega_{eff}r}{c})^2 e^{-2\alpha(r-a)}$ à l'extérieur du disque.

Dans l'approche simplifiée de l'optique géométrique, nous avons distingué 2 types de mode. Ils se distinguent, dans cette approche, par la valeur du nombre m :

- Les modes de galerie, qui nous intéressent, décrits par les fonctions de Bessel J_m pour m grand, pour lesquels la propagation se fait le long du périmètre du disque, par réflexion totale interne, en incidence quasi-rasante (supérieure à $\arcsin \frac{1}{n_{eff}} = 20^\circ$). La longueur effective de la cavité est $2\pi a n_{eff}$.
- Les modes rayonnants pour lesquels m est petit ou nul : Ces modes sont, au contraire, dominés par le mouvement dans la direction radiale. Ils correspondent aux angles d'incidence plus petits que l'angle critique qui vaut ici : $\arcsin \frac{1}{n_{eff}} = 20^\circ$. La cavité équivalente a une longueur de $2n_{eff}a$ où a est le rayon du disque. Ce mode consiste en oscillations radiales du champ électrique, comme les ondes formées par un caillou jeté dans l'eau.

Un article de Mair *et al.* [133] décrit l'observation de ces 2 types de modes dans des microdisques d'InGaN/GaN, les modes de galerie se distinguant par leur facteur de qualité supérieur.

5.2.3 Caractéristiques théoriques des modes de galerie

Facteur de qualité intrinsèque Les modes de galerie sont intrinsèquement couplés par une barrière d'épaisseur finie au continuum des modes propagatifs de l'espace libre. Pour estimer ces pertes dans la direction radiale, une approche courante consiste à utiliser l'analogie formelle du problème avec l'équation de Schrödinger. En effet, en posant $\Phi_r = \sqrt{r}R(r)$, l'équation 5.52 se réécrit :

$$-\frac{d^2\Phi_r}{dr^2} + V(r, \omega)\Phi_r = \frac{\omega^2}{c^2}\Phi_r \quad (5.56)$$

Cette équation est analogue à une équation de Schrödinger auto-cohérente où le terme positif $\frac{\omega^2}{c^2}$ joue le rôle de l'énergie, et où le potentiel s'écrit :

$$V(r, \omega) = \frac{\omega^2}{c^2}(1 - n^2(r)) + \frac{4m^2 + 3}{4r^2} \quad (5.57)$$

avec $n(r) = n_{eff}$ pour $r \leq a$ et $n(r) = 1$ pour $r > a$. Notons qu'ici le potentiel dépend de la valeur propre, à la différence d'une vraie équation de Schrödinger. Il apparaît clairement que la différence d'indice crée un potentiel attractif ($1 - n^2 \leq 0$) tandis que le moment angulaire du photon est à l'origine de la barrière centrifuge ($4m^2 + 3 > 0$). L'addition des 2 termes crée un puits métastable (pour $m \neq 0$) représenté sur la figure 5.7. La résolution de ce problème montre que les solutions (définies positives) sont de 2 types, comme nous l'avons déjà vu au travers des diverses approches :

- Pour les valeurs propres supérieures à V_{max} , la particule n'est pas piégée par le potentiel mais diffusée. Ces états de diffusion sont associés aux modes rayonnants, ayant des pertes par rayonnement importantes donc un mauvais facteur de qualité.
- Pour les valeurs propres comprises entre 0 et V_{max} , les états-propres quasi-liés correspondent aux modes de galerie. qui peuvent s'échapper du disque par couplage tunnel. Ils sont évanescents dans la barrière tunnel, s'étendant hors du disque sur une distance

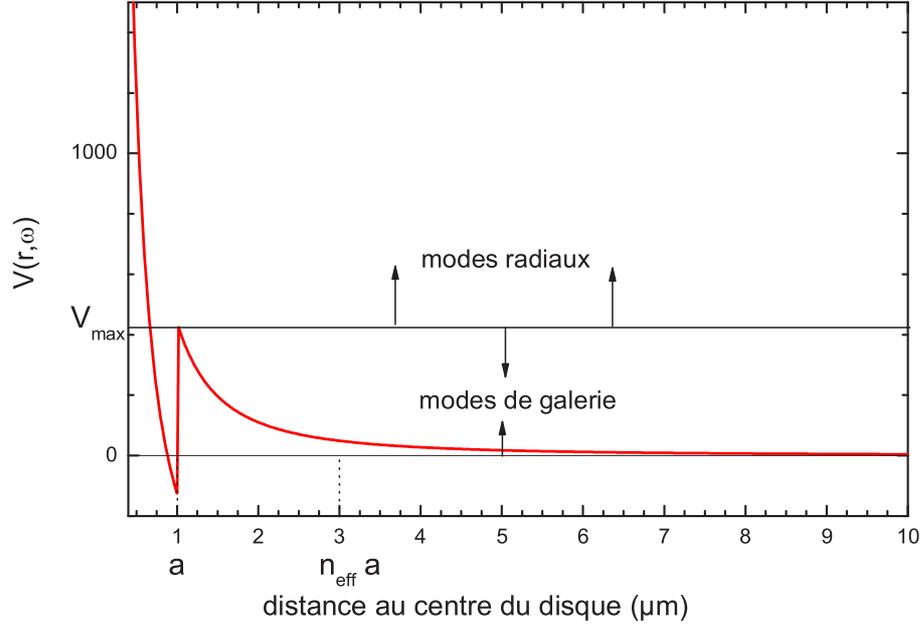


FIG. 5.7 – Potentiel radial pour un disque d'1 μm de rayon pour $E = 1660 meV$ et $m = 21$.

d'environ $\frac{m\lambda}{2\pi} \simeq n_{eff}a$ pour les modes de nombre radial $n = 1$ [127]. Donc le mode est évanescant sur cette distance puis propagatif, comme le montre la figure 5.8.

Il est usuel de caractériser la qualité d'un résonateur par $Q = \frac{\omega}{\Delta\omega}$, où $\Delta\omega$ représente la largeur de résonance, supposée de forme lorentzienne. La durée caractéristique d'amortissement de l'énergie et donc le temps de stockage du photon dans la cavité est relié à Q par : $t_{cav} = 2\pi\frac{Q}{\omega}$. Le facteur de qualité intrinsèque est estimé dans l'approximation WKB [127] par : $Q_{tunnel} = \exp 2mJ$, où

$$J = \tanh \sqrt{1 - 1/n_{eff}^2} - \sqrt{1 - 1/n_{eff}^2} \quad (5.58)$$

Pour $n_{eff} \simeq 3$, une valeur approchée du facteur de qualité intrinsèque est donnée par la formule plus simple :

$$Q_{tunnel} = 5^{m-1} \quad (5.59)$$

Pour les modes de galerie s'établissant à l'énergie des boîtes quantiques dans des microdisques de 2-3 μm de diamètre, m prend ses valeurs dans l'intervalle 10-25. Les facteurs de qualité intrinsèques correspondants valent entre 10^6 à 10^{16} , ce qui signifie que les pertes par rayonnement sont très faibles.

Volume effectif des modes de galerie Au chapitre 1, nous avons écrit le champ électrique quantifié sous la forme $\vec{E}(\vec{r}) = i \sum_l \sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{2\epsilon_0\epsilon_r}} (a_l \vec{\alpha}_l(\vec{r}) - a_l^\dagger \vec{\alpha}_l^*(\vec{r}))$ a_l et a_l^\dagger . Avec ces notations, nous avons défini le volume du mode par :

$$V = \int \int \int |\vec{\alpha}_l(\vec{r})|^2 d^3\vec{r} \quad (5.60)$$

Dans la pratique, une formule équivalente plus facile à utiliser est la suivante :

$$V = \frac{\int \int \int n^2(r) |\vec{E}(r)|^2 dr}{n^2 |E_{max}(r)|^2} \quad (5.61)$$

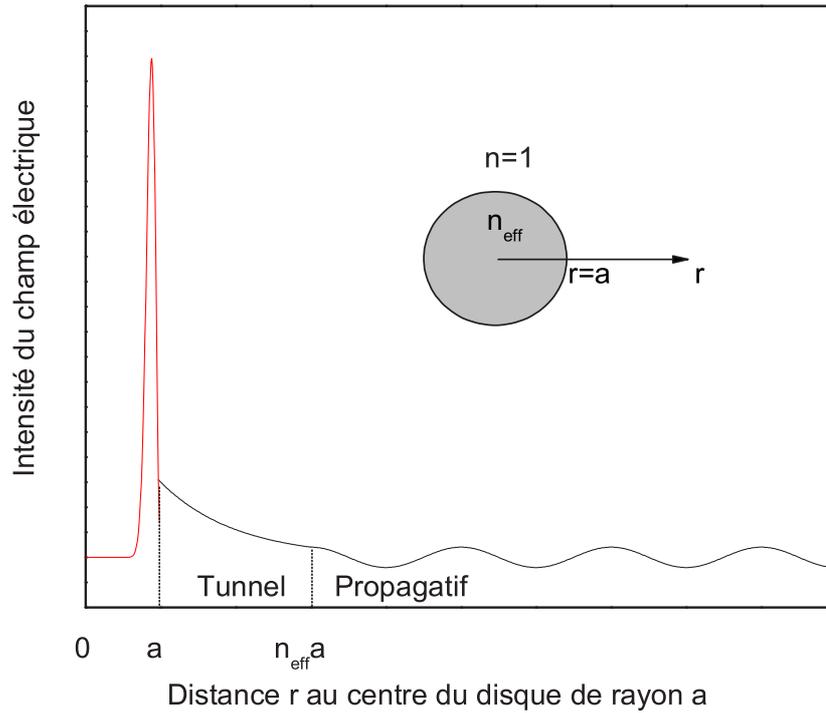


FIG. 5.8 – Intensité du champ électrique du mode $TE_{p=0,m=21,n=1}$ en fonction de la distance au centre d'un microdisque de rayon a . Le mode est guidé dans le disque ; la région évanescente s'étend de a à $n_{eff}a$; la région propagative s'étend de $n_{eff}a$ à l'infini. La discontinuité du champ électrique au bord du disque vient du fait que seul D (et pas E) est continu. Insert : schéma du microdisque de rayon a d'indice n_{eff} plongé dans un milieu d'indice 1 [123].

Elle a l'avantage de s'affranchir des coefficients de normalisation des fonctions d'onde du champ puisque le volume effectif est normalisé par le maximum d'intensité du champ électrique.

Cette formule met en évidence l'intérêt de minimiser ce volume. V est en effet inversement proportionnel au maximum du champ électrique. L'émetteur étant supposé placé au maximum du champ électrique, le confinement obtenu en diminuant V a pour effet de renforcer le champ local en interaction avec l'émetteur.

Nous calculerons plus loin dans le chapitre les volumes effectifs des microdisques. Citons pour l'instant une valeur à titre d'exemple : pour un disque de $2 \mu m$ de diamètre et pour le mode $TE_{p=0,n=1,m=21}$, le volume effectif du mode de galerie est de $0.07 \mu m^3$. Pour obtenir un tel confinement, il faut soit fabriquer un micropilier de diamètre 2 fois plus petit, soit des cristaux photoniques avec des trous de taille nanométrique. L'avantage des microdisques est donc de pouvoir confiner la lumière sur de très petits volumes, avec des cavités de taille relativement grande. Ces petits volumes effectifs, associés à des facteurs de qualité intrinsèques extraordinairement grands font des microdisques de très bons candidats pour le couplage fort.

5.3 Réalisation technologique

Cette partie est consacrée à la description des étapes technologiques de fabrication des microdisques. Les microdisques étaient déjà fabriqués au laboratoire au début de cette thèse, selon un procédé établi par B. Gayral. Nous commençons par décrire ce procédé, puis nous indiquons les

améliorations apportées au cours de la thèse. Le dernier paragraphe est consacré à la réalisation de microdisques que nous avons développés récemment, les microdisques sur AlOx.

5.3.1 Technologie utilisée au début de cette thèse

Structure de l'échantillon : La structure de la couche épitaxiée est constituée de :

- Une couche tampon de GaAs afin d'avoir une couche de GaAs de meilleure qualité que la surface du substrat commercial.
- Une couche riche en aluminium ($1.5\mu\text{m}$ de $\text{Ga}_{0.2}\text{Al}_{0.8}\text{As}$) destinée à former le pied du disque.
- Le disque lui-même, au centre duquel se trouve la couche active. Pour la caractérisation des microdisques, la couche active est formée de 3 plans de boîtes quantiques d'InAs. La façon usuelle de sonder une cavité est d'utiliser les boîtes quantiques comme sources internes à la cavité, en l'occurrence des boîtes quantiques d'InAs auto-organisées, ce, pour plusieurs raisons. D'une part, la dispersion en taille de ces boîtes quantiques résulte en une largeur inhomogène, permettant de sonder les modes sur une plage spectrale de plusieurs dizaine de meV . C'est pourquoi pour caractériser les microdisques, nous utilisons une couche épitaxiée contenant des boîtes quantiques d'InAs plutôt que les boîtes quantiques de GaAs n'émettant que sur une plage spectrale de $10 - 15 \text{ meV}$. Une fois la technologie caractérisée et mise au point, nous la testons alors sur un échantillon contenant des boîtes quantiques de GaAs et vérifions que les qualités de la cavité sont conservées. D'autre part, le coefficient d'absorption des boîtes quantiques est relativement faible [135], condition nécessaire pour ne pas dégrader les qualités de la cavité. Nous reviendrons en détails sur la question de l'absorption dans le paragraphe caractérisation optique des modes de galerie.

La figure 5.9 résume les structures des couches épitaxiées pour les 2 types de boîtes quantiques :

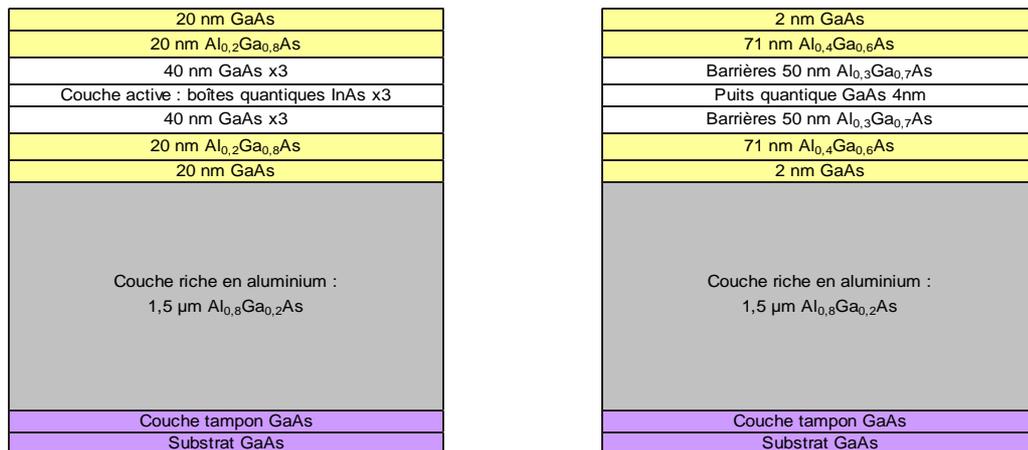


FIG. 5.9 – Schéma de la structure de la couche épitaxiée avec des boîtes quantiques d'InAs (à gauche) ou de GaAs (à droite). La partie destinée à former le pied du disque est en gris foncé. La zone active est en blanc.

Étapes Technologiques Au début de cette thèse, nous avons bénéficié des développements technologiques effectués sur les microdisques par B. Gayral *et al.* [136]. Les principales étapes technologiques, schématisées sur la figure 5.10, étaient les suivantes : Après enduction et recuit d'une

résine positive très utilisée en lithographie électronique, le PMMA (polyméthylméthacrylate, plus connu sous le nom générique de plexiglass), des motifs circulaires de 2.5 à $3.5 \mu\text{m}$ sont définis en lithographie électronique (étape a sur la figure 5.10). Une couche de dépôt de titane de 70 nm est déposée (étape b) puis "liftée" dans du trichloréthylène chaud (étape c). La gravure chimique (étape d) est effectuée à température ambiante en plongeant l'échantillon dans une solution d'attaque non-sélective, c'est-à-dire que la vitesse de gravure est la même pour les différentes concentrations d'aluminium présentes dans l'échantillon. A ce stade, on obtient des cylindres sous le masque de titane. Les flancs du cylindre sont des arcs de cercle car la gravure est isotrope. Les flancs du disque lui-même (le guide d'ondes) sont à peu près verticaux car leur épaisseur est très inférieure à la profondeur de gravure. Le masque de titane est retiré en plongeant l'échantillon dans du trichloréthylène chaud sous ultra-sons pendant 15 à 30 mn (étape e). Le pied du disque est défini par une solution d'attaque très sélective (étape f) : l'acide fluorhydrique HF dilué à 3% à la température de 4°C . Les sélectivités de la gravure du $\text{Ga}_{0.2}\text{Al}_{0.8}\text{As}$ et de $\text{Ga}_{0.6}\text{Al}_{0.4}\text{As}$ sont dans un rapport mille. La vitesse de gravure, abaissée par la température, est d'environ 10 nm.s^{-1} à 4°C . L'épaisseur du pied est donc réduite d'environ $1.2 \mu\text{m.mn}^{-1}$.

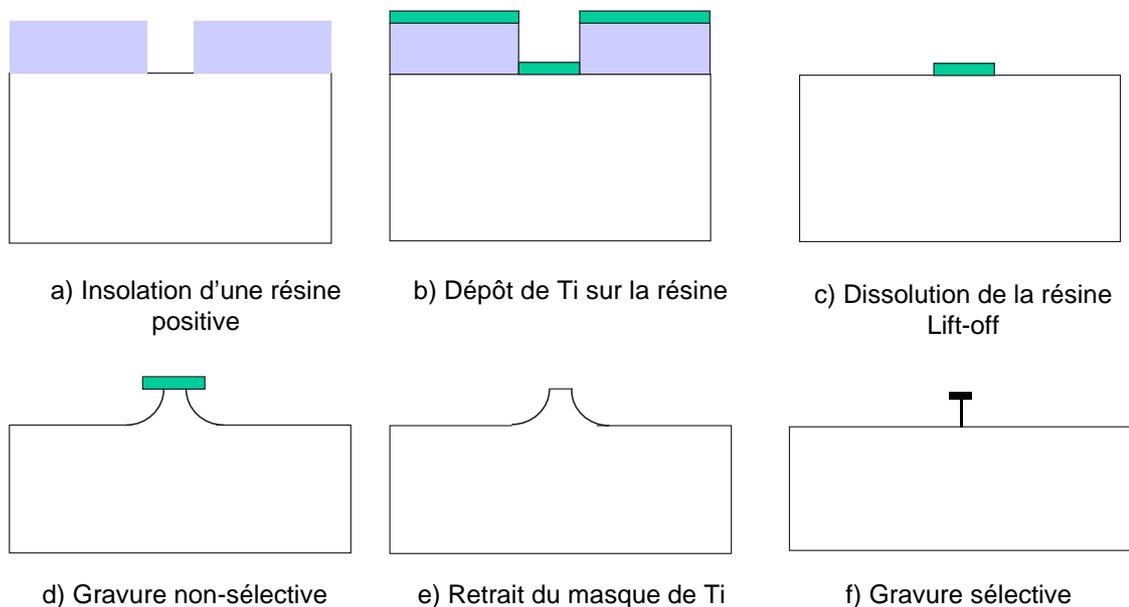


FIG. 5.10 – Schéma représentant les principales étapes technologiques de réalisation des microdisques.

Inconvénients Cette technologie produit des microdisques qui ont un facteur de qualité allant jusqu'à 12000 pour des microdisques de rayon $r \geq 1 \mu\text{m}$. Pour les rayons inférieurs, le facteur de qualité se dégrade. Ce facteur de qualité correspondait à l'état de l'art au début de cette thèse, ce qui explique son intérêt. Elle présente toutefois quelques inconvénients :

- Cette solution d'attaque à base de HBr doit être préparée au moins 24h à l'avance, et sa réactivité diminue ensuite au cours du temps. La gravure sans agitation prend quelques heures ; la gravure avec une légère agitation dure quelques minutes mais dépend fortement de la vitesse d'agitation et donc de l'expérimentateur. Elle est par conséquent difficilement reproductible.
- Le procédé de retrait du masque n'est pas entièrement reproductible et il peut arriver que la surface du disque ne soit pas exempte de petits résidus de titane. Ces résidus sont

gênants ; ils peuvent en effet absorber ou diffuser les photons émis dans le mode et donc faire chuter le facteur de qualité.

- La dernière étape de gravure au HF engendre 2 limites supplémentaires : d'une part, des pieds fins fragilisent le disque. D'autre part, avec une profondeur de gravure donnée, il n'est pas possible de réaliser des disques de diamètres très différents sur un même morceau d'échantillon.

Pour chacun de ces inconvénients, nous avons développé une solution. Nous avons changé de solution d'attaque, optimisé le retrait du masque puis nous nous sommes affranchis de cette étape par utilisation d'une résine négative. Enfin, pour pallier aux 2 derniers inconvénients cités ci-dessus, nous avons développé un nouveau type de cavité : les microdisques sur pied d'AlOx. Nous allons maintenant détailler ces solutions successivement.

5.3.2 Améliorations apportées aux microdisques

Reproductibilité de la gravure Dans le but d'obtenir une gravure reproductible, nous avons abandonné la solution d'origine au profit d'une solution dont on peut contrôler la vitesse de gravure. La solution utilisée est constituée de 3 composants en proportions égales : des cristaux de dichromate dissous dans l'eau (12.4mg/100ml d'eau), de l'acide bromhydrique et de l'acide acétique. La vitesse d'attaque de la solution dépend de la température. Afin de définir cette vitesse, nous thermostatons la solution à 20° C. La vitesse de gravure est alors de 80 nm.s^{-1} , c'est-à-dire que la gravure de $1.5 \mu\text{m}$ est obtenue en environ 17 s. Afin d'avoir une gravure homogène sur l'échantillon, et en particulier sans effet de bords sur un échantillon de moins d' 1 cm^2 , il est nécessaire de tourner l'échantillon dans la solution d'attaque, puis de rincer abondamment l'échantillon dans l'eau après gravure (2 minutes). Le contrôle de la profondeur de gravure se fait au MEB. Nous observons une sous-gravure dans un rapport d'environ 2/3 avec la gravure, car la gravure est moins rapide sous le masque de titane. La figure 5.11 montre le résultat après gravure avec le masque de titane. L'isotropie de la gravure est mise en évidence par le rayon de courbure des flancs. Le rayon initial du masque est de $4 \mu\text{m}$. Le diamètre final du disque est de $2 \mu\text{m}$ pour une profondeur de gravure est de $1.5 \mu\text{m}$.

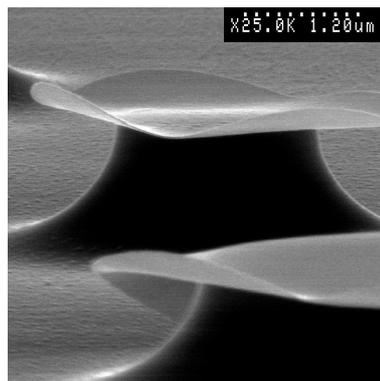


FIG. 5.11 – Images obtenues au MEB obtenues après gravure non-sélective avec le masque de titane (en clair sur l'image).

Retrait du masque Le titane sert de masque de gravure. L'épaisseur initialement déposée était de 70 nm . Afin de faciliter le retrait du masque nous avons cherché à optimiser l'épaisseur de titane à déposer. Différents essais ont montré que cette épaisseur peut être réduite jusqu'à 20 nm ;

c'est l'épaisseur minimale pour que le masque résiste à la solution d'attaque pendant le temps nécessaire à la gravure. En réduisant cette épaisseur, nous facilitons l'étape de retrait ; néanmoins, la surface après le retrait n'est pas toujours exempte de résidus de titane, comme le montre la figure 5.12.

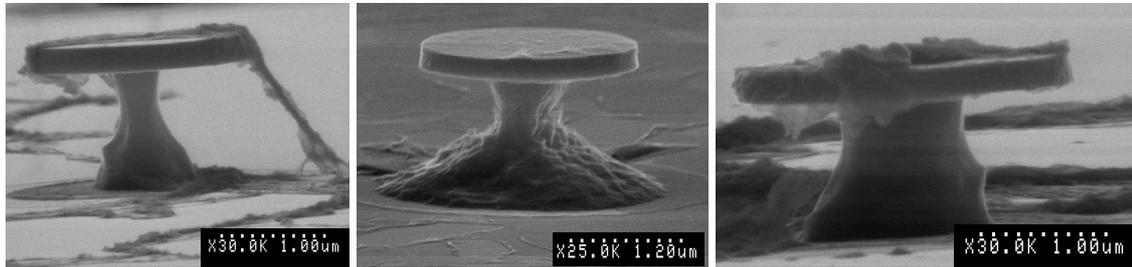
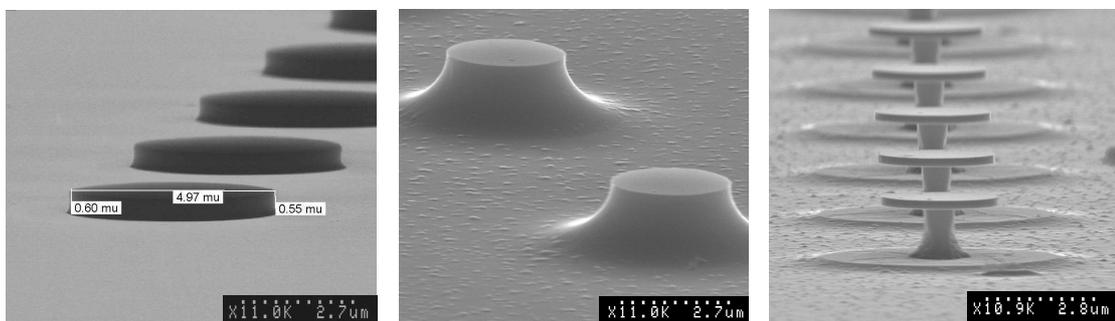


FIG. 5.12 – Images obtenues au MEB de microdisques présentant des résidus de masque de titane.

C'est le développement récent au laboratoire d'une résine négative (MAN2340) qui a permis de s'affranchir de ce problème et d'améliorer la technologie microdisques. En effet, la résine négative MAN2340 résiste à la solution de gravure non-sélective ; elle peut donc servir de masque de gravure. Cette résine simplifie la fabrication des microdisques, puisque le nombre d'étapes est réduit : Après désoxydation de la surface de l'échantillon, on procède à l'enduction et au recuit de la résine pendant 1 mn à 90°C. A l'issue de cette étape, la résine se rétracte et change de couleur. La figure 5.13a montre une image MEB des motifs de résine après développement pendant 20 à 30 s dans le révélateur MIF726 pur. Il s'agit de cylindres de 5 μm de diamètre et de 550 nm d'épaisseur environ, avec des flancs parfaitement verticaux comme le montre la figure 5.13a. Après



a) Après développement b) Après retrait du masque c) Après gravure au HF

FIG. 5.13 – Images obtenues au MEB après les principales étapes technologiques de réalisation des microdisques à partir d'une résine négative.

le développement, l'échantillon est gravé par la solution non-sélective. Le retrait de la résine se fait dans l'acétone en quelques secondes (figure 5.13b). Cette étape retire parfaitement le masque et de façon reproductible. La dernière étape de gravure au HF est identique.

5.3.3 Microdisque sur AlOx

Motivations Nous avons également vu que les microdisques présentent 2 autres inconvénients : D'une part, la gravure chimique au HF ne permet pas de réaliser sur un même échantillon des microdisques de tailles très différentes. Cet inconvénient est illustré sur la figure 5.14. Un temps de gravure donné est adapté à un diamètre de microdisque : pour les microdisques les plus gros

(voir le disque à l'arrière-plan sur la figure 5.14), ce temps n'est pas suffisant, pour des microdisques plus petits, l'intégralité du pied a été gravée (voir en bas à droite sur la figure 5.14). D'autre part, la

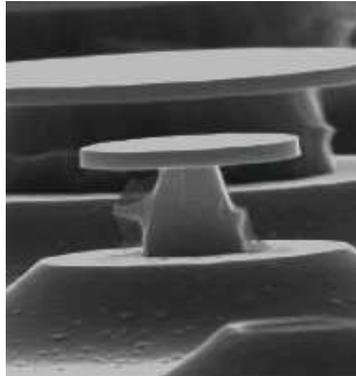


FIG. 5.14 – Image obtenue au MEB de microdisques à partir d'un masque présentant des tailles différentes.

forme même du microdisque rend ces objets très fragiles mécaniquement. Pour assurer la robustesse des microdisques, il faut une épaisseur minimale de pied, ce qui exclut la possibilité de réaliser des microdisques de très petits diamètres ($< 1 \mu m$). Afin de remédier à ces 2 inconvénients, nous avons développé un nouveau type de microdisque, en collaboration avec I. Sagnes : les microdisques sur oxyde d'aluminium ($AlOx$). Le principe est simple : le pied, au lieu d'être gravé est oxydé de façon contrôlée. Autrement dit, la gravure sélective de la partie riche en aluminium est remplacée par une oxydation sélective. La technique d'oxydation contrôlée a été découverte en 1990 [137]. Depuis, l'oxydation contrôlée de l'aluminium trouve un large champ d'applications : grâce à ses propriétés d'isolant, l' $AlOx$ peut par exemple confiner le courant dans les VCSELs [138], grâce à son indice faible ($n = 1.6$), il est utilisé pour confiner la lumière dans les miroirs de Bragg [139], les cristaux photoniques [140], ou les micropiliers [165]. C'est de ce faible indice dont nous cherchons à tirer parti avec les microdisques sur $AlOx$; le contraste d'indice entre le disque et son environnement, nécessaire au confinement de la lumière est assuré par l'interface $GaAs / AlOx$ d'une part et par le contraste vide/ $GaAs$ d'autre part. Ces microdisques remédient aux 2 inconvénients évoqués : le pied du disque est aussi grand que le disque lui-même, ce qui assure une plus grande robustesse. De plus, avec ce procédé, on peut réaliser simultanément des microdisques avec une dispersion de diamètres arbitrairement grande.

Structure des couches épitaxiées La seule différence de structure par rapport à celle décrite précédemment et reportée en figure 5.9 réside dans la composition en aluminium du pied, qui doit être supérieure à 95 % pour l'oxydation.

Étapes technologiques Dans le principe, les étapes technologiques sont identiques à celle des microdisques précédents, la dernière étape de gravure étant remplacée par une étape d'oxydation. Néanmoins, après la première attaque, il n'est pas possible de retirer le masque de titane, car l'échantillon doit immédiatement aller dans le four d'oxydation. A la sortie du four d'oxydation, le titane a formé du TiO_2 , très difficile à retirer. Ceci nous impose donc de changer de masque.

Nous avons également essayé de transposer la technologie utilisant la résine négative des microdisques "sur air" ; après la gravure, la résine doit être enlevée avant l'aller dans le four à 400° . Pour cela, l'échantillon est plongé dans l'acétone. Les essais ont montré qu'en présence de solvants,

l'oxydation contrôlée ne se déroule pas de façon reproductible. Une autre solution, à développer à l'avenir consistera à transférer le masque de résine négative dans le nitrure.

La procédure qui a produit avec succès des microdisques AlOx est résumée sur la figure 5.15 :

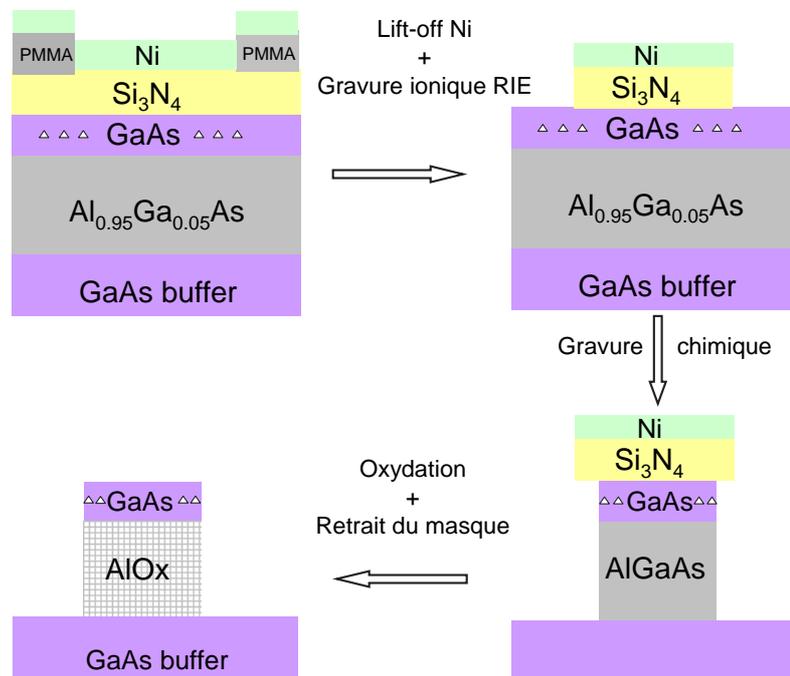


FIG. 5.15 – Description schématique des étapes technologiques pour la réalisation de microdisques AlOx .

1. Après un dépôt de 300 nm de nitrure Si_3N_4 , un lift-off de 10 nm de nickel est suivi d'une gravure en RIE à base de fluor (SF_6) pour graver le nitrure, et d'oxygène pour graver la résine. Des motifs circulaires de 4.8 à $6 \mu\text{m}$ de diamètre sont ainsi définis par transfert du masque de nickel vers le nitrure.
2. Ensuite, l'échantillon est gravé par la solution d'attaque non-sélective, de la même façon que pour les microdisques dits "sur air". Après une gravure d' $1.8 \mu\text{m}$, le diamètre des disques est diminué d'environ $1.2 \mu\text{m}$. L'échantillon est alors immédiatement rincé dans l'eau désionisée et l'on doit éviter tout contact avec l'air avant de le placer dans le four d'oxydation. En effet, au contact de l'air s'initie une oxydation incontrôlée, qui provoque des dislocations dans l'échantillon. L'oxydation contrôlée du pied est réalisée dans un four d'oxydation à $400 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 90 mn sous vapeur d'eau et flux d'azote avec un débit de 1 l.h^{-1} .
3. A la sortie du four, il ne reste plus qu'à enlever le masque de $\text{Ni/Si}_3\text{N}_4$: le nickel s'enlève au moyen d'une solution diluée d'acide nitrique HNO_3 , le Si_3N_4 en RIE fluorée à base de SF_6 .

La figure 5.16 montre 2 microdisques : la photographie de gauche a été prise à la sortie du four. Le masque de nitrure est visible. La photographie de droite est prise après retrait du masque de nitrure. Comme l' AlOx est un isolant, le faisceau d'électrons du microscope électronique à balayage charge le GaAs et ces charges ne peuvent s'évacuer dans le pied du disque : c'est pourquoi le disque apparaît blanc. Le pied du disque est aussi grand que le disque lui-même. Par conséquent, l'un des avantages de ces microdisques est leur plus grande robustesse. Cela rend possible la réalisation de très petits microdisques, qui requerraient des épaisseurs de pied trop fines avec la technique

”classique”. De plus, il est possible de fabriquer sur un même échantillon des disques de tailles très différentes : il suffit d’attendre suffisamment longtemps pour oxyder les pieds les plus épais.

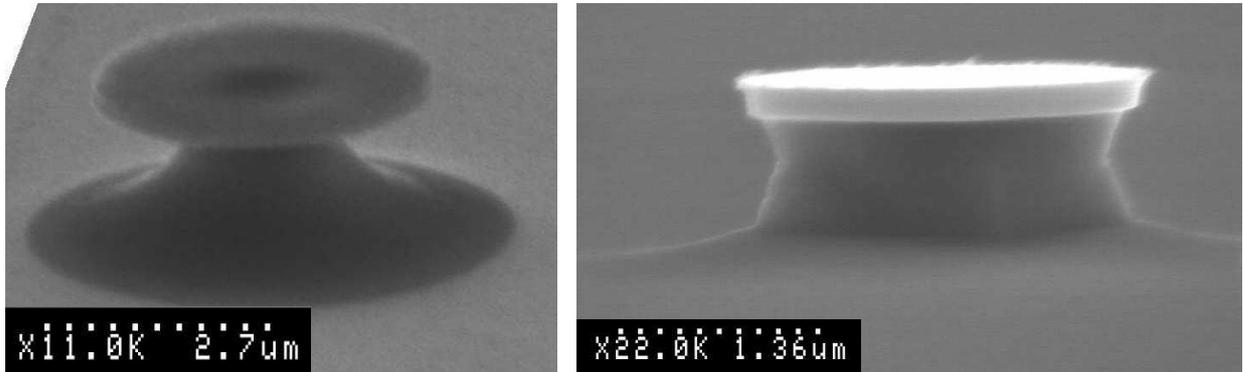


FIG. 5.16 – Image obtenue au MEB de microdisques AlOx . A gauche : à la sortie du four d’oxydation, on distingue le disque avant retrait du masque. A droite : microdisque AlOx après l’étape finale de retrait du masque.

En résumé, dans cette partie, nous avons exposé les étapes technologiques de réalisation des microdisques, qui consistent essentiellement en 2 étapes de gravure humide. Nous avons montré les différentes solutions apportées pour améliorer la fabrication et la rendre reproductible. L’une d’elles consiste à remplacer la gravure du pied par son oxydation contrôlée. La caractérisation des microdisques sur AlOx fait l’objet de la partie ci-dessous.

5.4 Caractérisation optique des modes de galerie dans les microdisques sur AlOx

Au chapitre 1, nous avons montré que le facteur de qualité des modes de cavité est un paramètre-clef pour l’observation du régime de couplage fort, et plus généralement pour l’observation de phénomènes d’EDQC. Cette partie de caractérisation est consacrée à la mesure du facteur de qualité des microdisques AlOx .

5.4.1 Caractérisation optique des modes de galerie

Pour caractériser les microdisques, nous étudions la photoluminescence des boîtes quantiques dans les modes de cavité, l’un des avantages des boîtes quantiques d’InAs étant leur très grande largeur inhomogène. La largeur inhomogène des boîtes quantiques et la présence d’états excités nous permet de sonder les modes entre 1200 et 1320 meV . Les mesures de caractérisation des modes sont effectuées en microphotoluminescence à 4 K sur le dispositif de micro-photoluminescence sous excitation continue décrit dans l’annexe A. Le procédé de caractérisation est le même qu’il s’agisse des microdisques ”classiques” ou des microdisques sur AlOx . Nous décrivons dans cette partie la caractérisation des microdisques dits sur AlOx . Pour les performances atteintes dans les microdisques classiques, nous n’avons pas apporté d’amélioration en terme de facteur de qualité par rapport à la technologie apportée au laboratoire par Gayral *et al.* [48]. Le facteur de qualité est limité à 12000.

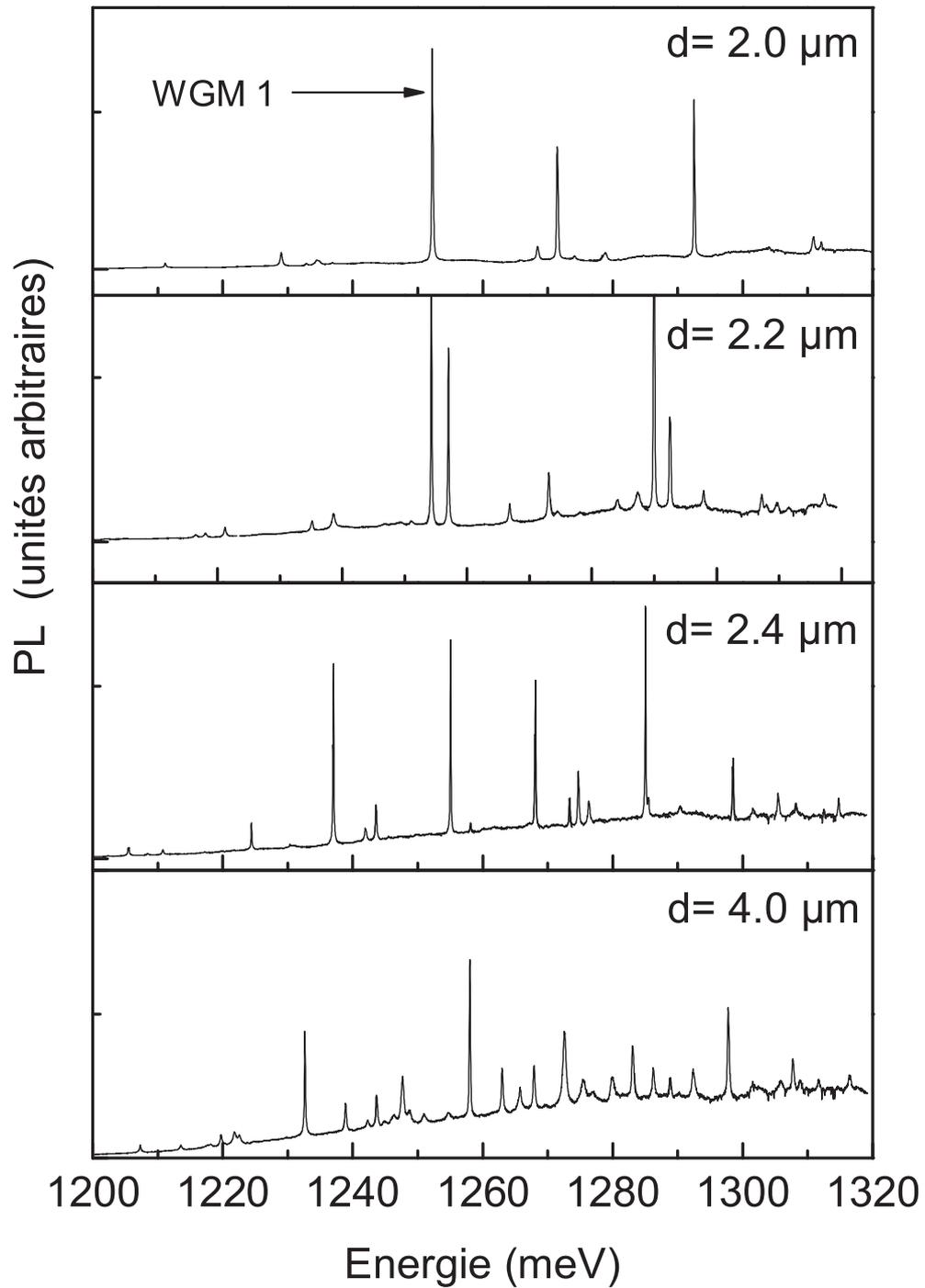


FIG. 5.17 – Spectres de micro-photoluminescence mesurés à 4 K sur les microdisques sur AlO_x de diamètre variant de 2 à $4 \mu\text{m}$.

La figure 5.17 montre les spectres obtenus pour différents diamètres de microdisques, allant de 2 à 4 μm . Les raies observées résultent de l'exaltation de l'émission des états de boîtes quantiques dans les modes de galerie par effet Purcell [31]. L'observation de raies discrètes montre que le contraste d'indice entre l'AlOx ($n = 1.6$) et le GaAs ($n = 3.3$) confine effectivement les modes dans le plan du disque. Comme attendu, l'intervalle spectral libre augmente quand le rayon du disque diminue. Nous allons maintenant étudier leur facteur de qualité.

5.4.2 Facteur de qualité

Le facteur de qualité intrinsèque, dû aux pertes par effet tunnel optique (c'est-à-dire aux pertes radiatives) peut être limité par 2 sources de pertes :

- L'absorption : elle dépend du matériau actif et de la puissance de pompe et peut théoriquement être annulée à la transparence.
- La diffusion des photons par les rugosités de la surface : ce sont des pertes extrinsèques, induites par les imperfections de la technologie. Pour cette raison, la technologie doit s'efforcer de minimiser les causes de diffusion.

En résumé, le facteur de qualité expérimental Q est donné par [124] :

$$Q^{-1} = Q_{tunnel}^{-1} + Q_{absorption}^{-1} + Q_{diffusion}^{-1} \quad (5.62)$$

Pour évaluer le facteur de qualité des modes de galerie des microdisques, nous étudions l'émission des boîtes quantiques dans les modes en fonction de la puissance. La figure 5.18a montre l'intensité intégrée du mode de galerie étiqueté WGM 1 sur la figure 5.17 en fonction de la puissance d'excitation. Cette figure met en évidence un seuil à 1100 μW (soit une intensité de 3900 $W.cm^{-2}$). Au-delà du seuil, les boîtes quantiques lasent dans les modes de galerie.

La figure 5.18b représente la largeur à mi-hauteur (FWHM) de ce mode aux puissances correspondantes, avec un comportement en U en fonction de la puissance. La raie s'affine avec la puissance jusqu'au seuil, passant de 250 à 100 μeV . En augmentant la puissance d'excitation, on augmente le facteur de remplissage des boîtes quantiques jusqu'à la saturation de l'absorption. L'affinement spectral sous la transparence montre qu'à basse puissance, le facteur de qualité est limité par l'absorption des boîtes quantiques. Ce terme Q_{abs}^{-1} diminue avec la puissance, et devient négligeable à la transparence. Le terme de transparence signifie que les états de boîtes quantiques sont remplis avec un taux de remplissage exactement égal à 1. L'émission compense alors exactement l'absorption par les états des boîtes quantiques. Le facteur de qualité, à la transparence, est donné par : $Q = \frac{E}{\Delta E}$, où E est l'énergie d'émission et ΔE la largeur spectrale du mode. On mesure une largeur de raie à la résonance de 100 μeV à l'énergie $E = 1252 meV$, d'où l'on déduit un facteur de qualité de 12500, soit un temps de stockage du photon dans la cavité de 4 ps.

De la valeur de largeur de raie de 250 μeV à basse puissance, correspondant à un facteur de qualité de $\frac{1250}{0.250} = 5000$, nous déduisons une valeur pour l'absorption :

$$\frac{1}{Q_{abs}} = \frac{1}{5000} - \frac{1}{12500} \quad (5.63)$$

soit $Q_{abs} \simeq 8300$, ce qui correspond à un coefficient d'absorption $\alpha = \frac{2\pi n_{eff}}{\lambda Q_{abs}} = 8 cm^{-1}$, compatible avec les mesures d'absorption reportées sur boîtes quantiques d'InAs [135]. Les mesures effectuées

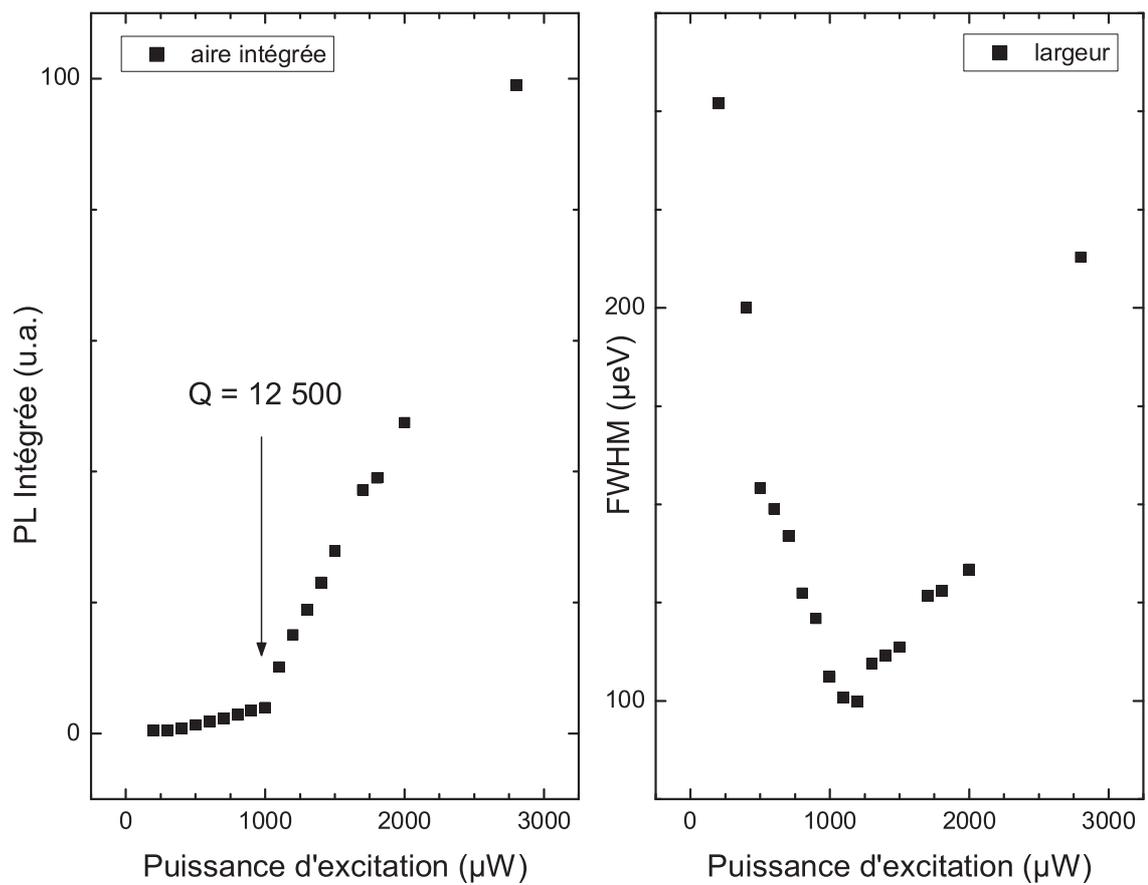


FIG. 5.18 – A gauche : PL intégrée spectralement du mode de galerie WGM1 à 4 K en fonction de la puissance d'excitation sur un microdisque de $2\ \mu\text{m}$ de diamètre. A droite : Largeur à mi-hauteur du mode WGM1 à 4 K en fonction de la puissance d'excitation.

sur d'autres disques, y compris de diamètre supérieur donnent des valeurs identiques pour le facteur de qualité.

Au-delà du seuil, la raie s'élargit ; cet effet a également été observé par [48, 141, 142] et attribué à l'absorption par les porteurs libres. Il peut également être dû aux fluctuations de la densité de porteurs dans la région active, résultant en une fluctuation d'indice [143, 144]. En supposant que la fluctuation est de la forme $\langle \Delta n^2 \rangle = \langle n \rangle$, l'élargissement attendu est proportionnel à $\sqrt{\frac{n}{V_c}}$ où n est la densité de porteurs et V_c le volume occupé par ces porteurs.

En résumé, les microdisques AlOx/GaAs ont des facteurs de qualité identiques aux microdisques "sur air" que nous fabriquons. Par ailleurs, cette technologie présente plusieurs avantages :

- Il est possible de réaliser toutes les tailles de microdisques sur le même échantillon.
- Les microdisques obtenus sont plus robustes, ce qui ouvre la possibilité de réaliser des microdisques très petits. Nous n'avons pas testé cette possibilité, à la fois par manque de temps et car la technologie n'est pas encore parfaitement maîtrisée (en particulier avec la résine négative). De plus, la forte composition en aluminium du pied du disque risque de rugosifier l'interface avec la zone active, ce qui est néfaste pour la réalisation de très grandes boîtes quantiques naturelles. Les microdisques AlOx (et notamment les plus petits) sont donc particulièrement prometteurs si l'on envisage une zone active comprenant d'autres boîtes quantiques que les boîtes quantiques naturelles de GaAs.

5.4.3 Identification des modes de galerie

Dans ce paragraphe, nous allons tenter d'identifier les nombres (n, m) des principaux modes observés sur la figure 5.17. Dans la partie inférieure de la figure 5.19 nous avons repris le spectre de photoluminescence du microdisque de $2.4 \mu m$ de diamètre de la figure 5.17.

On distingue sur le spectre 5 raies principales, à 1237, 1255, 1268.1, 1285 et 1298.5 meV, soit un intervalle spectral libre moyen d'environ 20 meV. L'intervalle spectral libre entre les nombres radiaux $n = 1$, qu'ils soient TE ou TM est d'environ 80 meV. Donc pour rendre compte de l'écart de 20 meV, il faut également prendre en compte les modes radiaux $n = 2$.

La partie supérieure de la figure 5.19 montre le calcul de tous les modes TE et TM de nombre radial $n = 1$ et $n = 2$ dont l'énergie se trouve dans la fenêtre spectrale 1200 – 1320 meV, pour des diamètres allant de 1.9 à 2.5 μm . Nous avons considéré par simplicité que le disque est entouré d'un milieu d'indice moyen 1.3. Sur cette figure, les traits verticaux pointillés rappellent l'énergie mesurée des 5 modes considérés. Une bonne adéquation entre mesures et calculs est obtenue pour un diamètre de 2.25 μm . Les raies mesurées correspondent aux énergies calculées aux modes suivants :

$TE_{p=0,m=19,n=1}$, $TE_{p=0,m=14,n=2}$, $TM_{p=0,m=18,n=1}$, $TE_{p=0,m=15,n=2}$ et $TM_{p=0,m=20,n=1}$. Les autres modes mesurés en photoluminescence correspondent donc aux nombres radiaux $n \geq 3$. Plus que l'identification exacte des modes, dont nous avons calculé l'énergie, rappelons-le, dans l'approximation des modes de galerie, ce qu'il faut retenir, c'est que les modes qui dominent le spectre et présentent de bons facteur de qualité correspondent aux polarisations TE et TM et aux nombres radiaux $n = 1$ et $n = 2$. Notons au passage que les valeurs de m correspondantes sont élevées ($m \geq 14$) ; il s'agit donc effectivement de modes de galerie et non de modes radiaux.

L'analyse des spectres des microdisques de 2 μm et 2.2 μm de diamètre conduit aux mêmes conclusions.

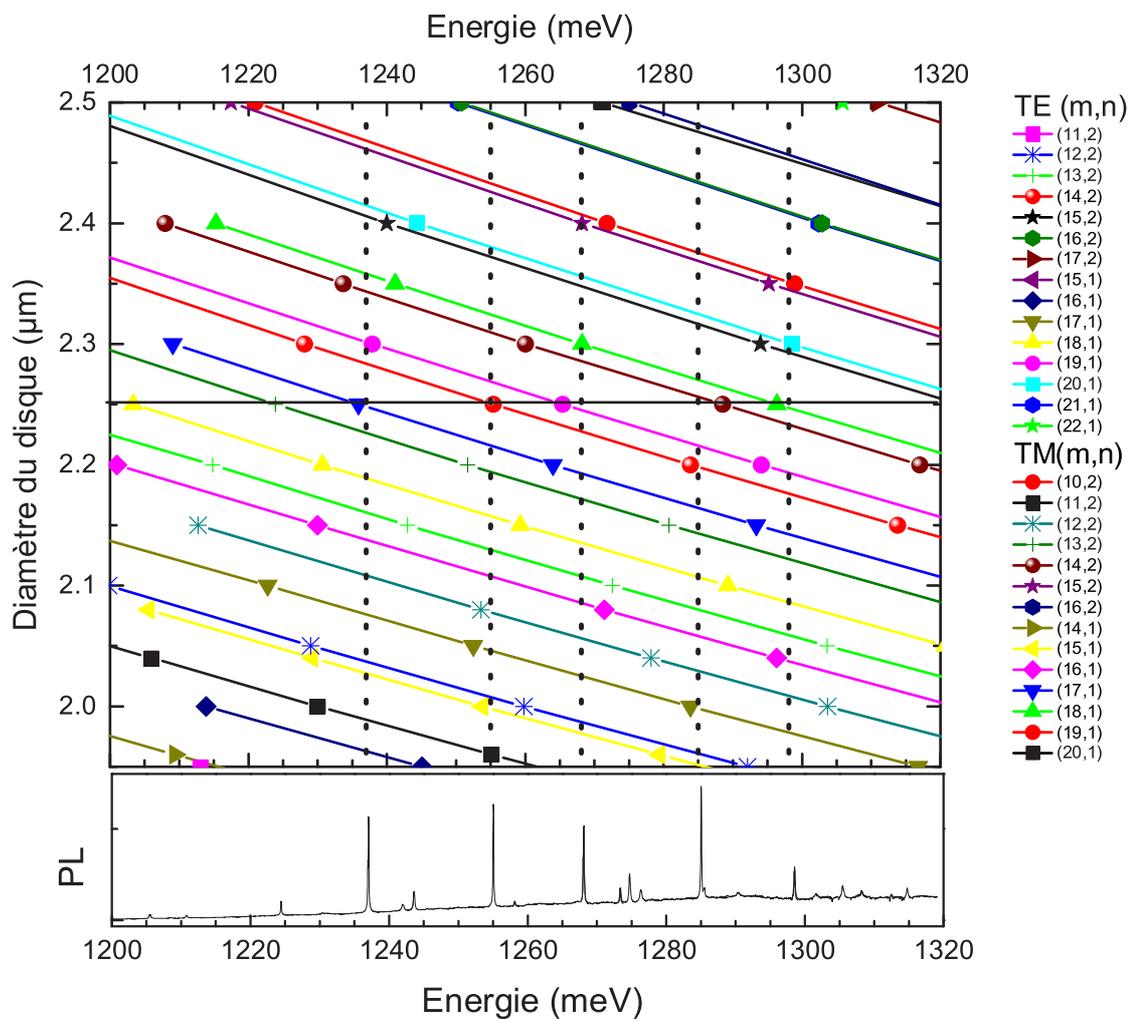


FIG. 5.19 – En bas : Photoluminescence d'un microdisque sur AlOx de $2.4 \mu\text{m}$ de diamètre. En haut : Calcul de l'énergie d'émission des modes TE et TM ($n=1$ et 2) dans la fenêtre 1200-1320 meV pour différents diamètres de microdisques. Les énergies des principales raies du spectre expérimental sont reportées en traits verticaux pointillés.

En résumé, nous avons mesuré des facteurs de qualité sur les microdisques AlO_x identiques aux microdisques sur air que nous fabriquons. Ce facteur de qualité, mesuré dans des expériences de micro-PL en fonction de la puissance, vaut $Q = 12000$ pour des diamètres supérieurs à $2 \mu\text{m}$. Une autre technique, plus délicate à mettre en oeuvre consiste à coupler la lumière du microdisque au mode fondamental d'une fibre, dans la région de l'espace où le champ du mode de galerie est évanescent. Cette technique est très intéressante pour réaliser en transmission des mesures de facteurs de qualité très élevés. Des facteurs de qualité de plusieurs centaines de milliers ont ainsi pu être mesurés sur des microdisques [152, 155]. Il faut toutefois noter que ces valeurs importantes de facteur de qualité ($Q \sim$ quelques 10^5) dans les microdisques ont été atteintes dans les microdisques $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ pour des longueurs d'onde supérieures à $1.2 \mu\text{m}$ [132]. En revanche, il a également été montré que dans ces mêmes microdisques, les pertes optiques augmentent dramatiquement pour $\lambda < 1 \mu\text{m}$. Ces pertes s'étendent sur 350 meV dans la bande interdite et sont attribuées à l'incorporation d'impuretés d'oxygène dans le réseau d' AlGaAs [132].

5.5 Boîtes Quantiques de GaAs en microdisques

Dans la partie précédente, nous avons testé la qualité de la technologie sur des boîtes quantiques d'InAs. Comme nous souhaitons *in fine* insérer des boîtes quantiques de GaAs en microdisques pour observer le couplage fort, il est nécessaire de vérifier le facteur de qualité des modes dans les microdisques contenant des boîtes quantiques de GaAs, qui diffèrent des boîtes quantiques d'InAs par leur densité, leur énergie et leur coefficient d'absorption. Nous allons également déterminer le diamètre des microdisques le plus favorable à l'observation du couplage fort. Enfin, nous nous intéressons au diagramme de rayonnement des modes de galerie de ces microdisques.

5.5.1 Facteur de qualité et volume effectif : choix du diamètre optimal

Facteur de qualité La figure 5.20 montre des spectres obtenus à forte puissance, plus précisément à la transparence pour des microdisques dont le diamètre varie de 1.9 à $3.5 \mu\text{m}$. La plage d'émission des boîtes quantiques est beaucoup plus réduite (environ 15 meV).

Le calcul des facteurs de qualité en fonction du diamètre montre que celui-ci est constant (environ 12000) des plus gros diamètres jusque vers $3 \mu\text{m}$ (voir la figure 5.21). Pour des diamètres inférieurs, il diminue. Il y a à cela 2 raisons conjuguées, d'origines différentes :

- Une origine intrinsèque : En effet, plus le disque est petit, plus l'ordre m diminue, à énergie fixée. Or nous avons vu que le facteur de qualité intrinsèque dépend exponentiellement du nombre m . Ceci peut être compris qualitativement en considérant la figure 5.7. La hauteur de barrière centrifuge est d'autant plus petite que le moment angulaire m est petit. Rappelons que sa hauteur est proportionnelle à m^2 . Une barrière plus petite facilite le couplage tunnel (donc les pertes), en vertu du principe d'incertitude de Heisenberg $\Delta E \cdot \Delta t = \text{constante}$.
- Une origine extrinsèque : le diamètre limite d_{limite} en-dessous duquel on observe une dégradation du facteur de qualité est dépendant de la technologie, ce qui signifie que les pertes extrinsèques dominent les pertes intrinsèques. Il varie entre 2 et 3 microns pour l'ensemble des technologies réalisées.

Volume effectif Le volume effectif est le second paramètre important, caractérisant le confinement obtenu par la cavité. Verticalement, le confinement est fixé par la hauteur du disque

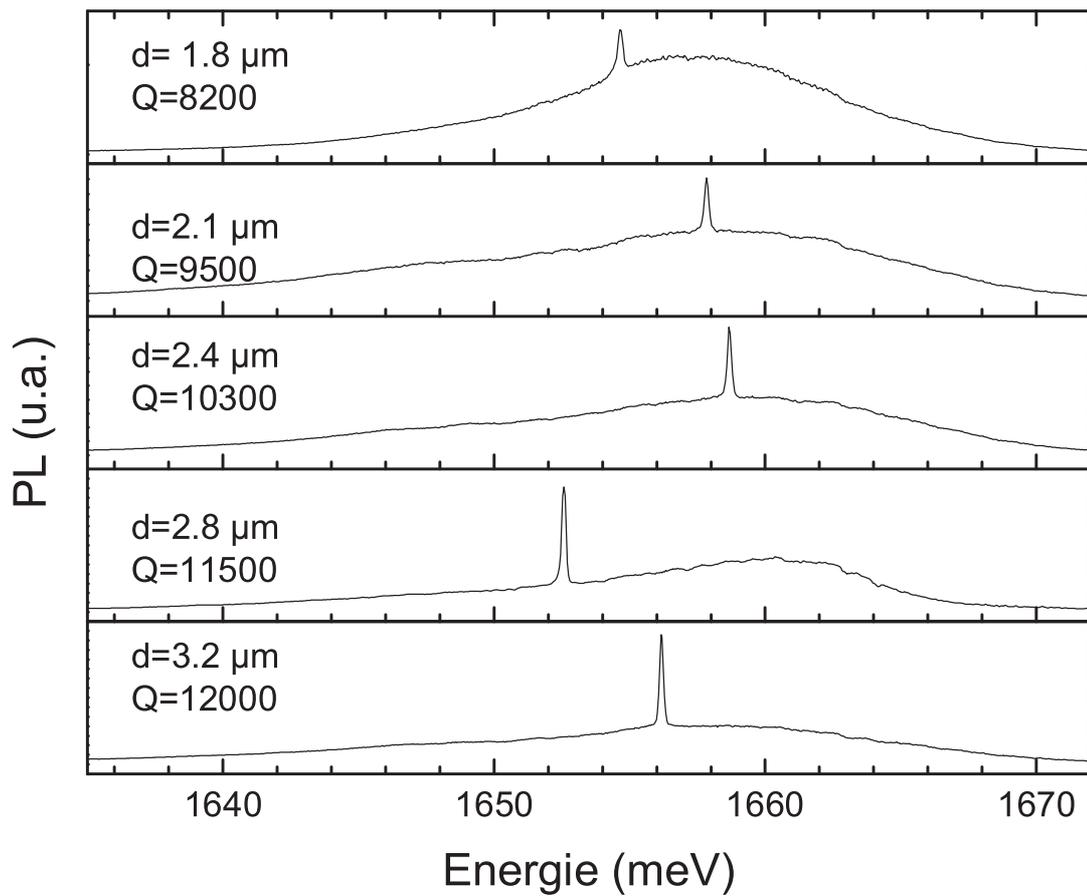


FIG. 5.20 – Spectres obtenus à 4 K à forte puissance sur des microdisques contenant des boîtes quantiques de GaAs de diamètre variant de 1.8 μm à 2.5 μm . Le facteur de qualité mesuré à la transparence est indiqué pour chaque spectre.

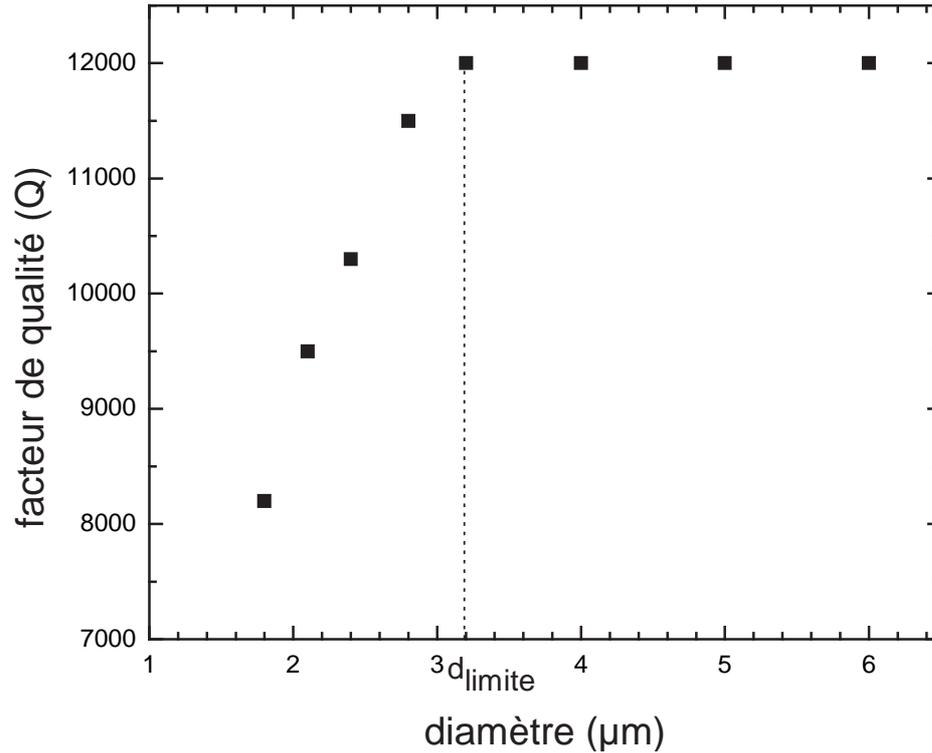


FIG. 5.21 – Facteur de qualité Q mesuré sur des microdisques contenant des boîtes quantiques de GaAs de diamètre variant de $1.8 \mu\text{m}$ à $6 \mu\text{m}$.

et le contraste d'indice. Il dépend du nombre p considéré. Reprenons ici la figure permettant la résolution graphique des équations transcendantes expliquée au paragraphe 1 du chapitre précédent. Nous prenons comme énergie $E = 1650 \text{ meV}$. L'intersection du cercle avec les modes $p = 0, 1, 2$ montrent que ces 3 modes-ci existent à cette énergie. Seuls les modes pairs se couplent aux boîtes quantiques, puisque le champ électromagnétique des modes impairs est nul au milieu du guide. Le mode $p = 2$ est à la limite d'existence, c'est-à-dire qu'il est très peu confiné. La figure 5.23 résume les indices effectifs du guide d'indice 3.3 et d'épaisseur $e = 250 \text{ nm}$ pour ces modes, à l'énergie $E = 1650 \text{ meV}$. La valeur pour le nombre $p = 2$ correspondant au mode TE_2 est de 1.35, et de 1.01 pour le mode TM_2 . En conséquence, le champ local vu par les émetteurs au milieu de la zone active est très peu renforcé; ce mode n'est donc pas intéressant pour le couplage exciton-photon. Par la suite, nous nous intéresserons uniquement aux modes TE et TM caractérisés par le nombre $p = 0$.

Dans le plan, le confinement du champ électromagnétique, dépend du diamètre du disque, à énergie fixée. Les volumes effectifs correspondant aux modes de galerie à l'énergie des boîtes quantiques de GaAs sont calculés pour différents diamètres pour les nombres $p = 0$ et $n = 1$ et reportés sur la figure 5.24. Notre objectif, rappelons-le est de maximiser le rapport Q/\sqrt{V} , qui figure sur la moitié droite de la figure 5.24. D'après ce graphe, le rapport $\frac{Q}{\sqrt{V}}$ et donc le couplage est maximal pour un diamètre de microdisque d'environ $d_{opt} = 3.1 \mu\text{m}$. Ce maximum dépend du diamètre limite d_{limite} et prend ses valeurs entre 2 et 3 μm . Ce qu'il faut remarquer, c'est que la variation de Q/\sqrt{V} avec le diamètre du disque est assez douce : si l'on prend un diamètre qui dévie d'un micron du diamètre optimal, le rapport Q/\sqrt{V} ne se dégrade que de 10%. En résumé, on pourra fabriquer des disques de diamètre variant de 2 à 4 μm , le choix d'un diamètre précis n'étant pas imposé par

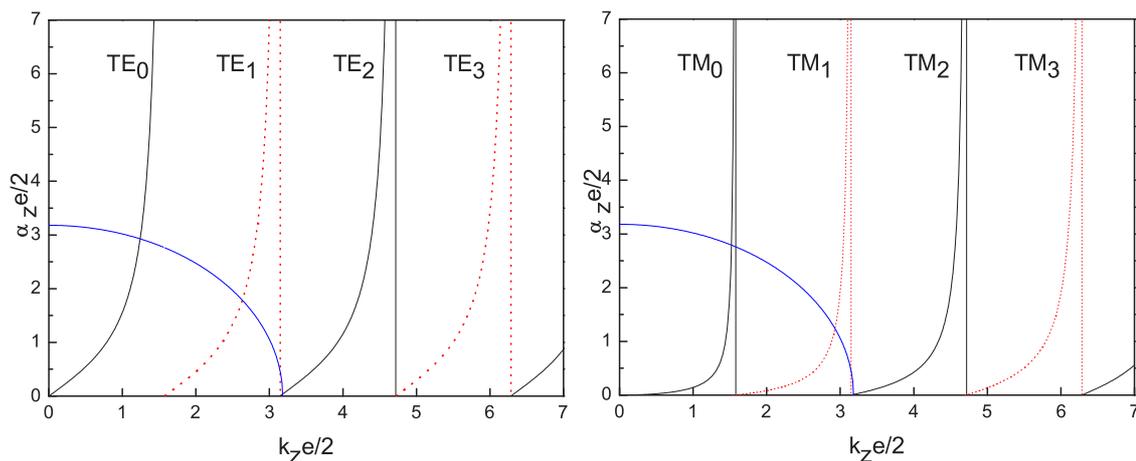


FIG. 5.22 – Résolution des équations transcendantales pour déterminer les modes possibles pour un disque de 250 nm d'épaisseur, à l'énergie $E = 1650 \text{ meV}$. Les modes qui s'établissent sont ceux qui ont une intersection avec le cercle de rayon R .

	TE	TM
$p=0$	$n_{\text{eff}}=3.09$	$n_{\text{eff}}=2.96$
$p=1$	Pas de couplage	Pas de couplage
$p=2$	$n_{\text{eff}}=1.35$	$n_{\text{eff}}=1.01$

FIG. 5.23 – Tableau récapitulatif des indices effectifs des modes TE et TM du guide d'onde pour un disque de 250 nm d'épaisseur d'indice 3.3 à l'énergie $E = 1650 \text{ meV}$.

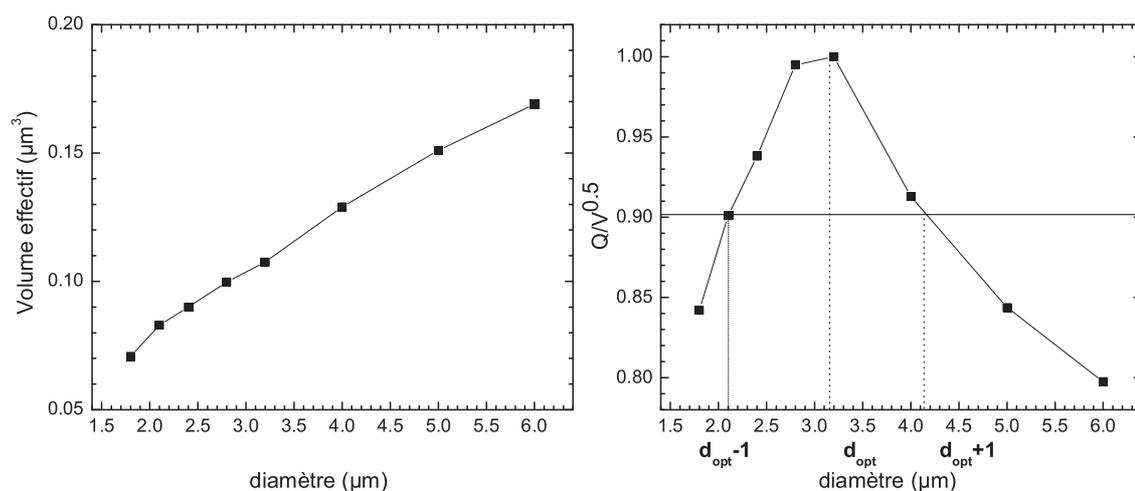


FIG. 5.24 – Figure de gauche : calcul de volume effectif des modes de galerie en fonction du diamètre du microdisque. Figure de droite : calcul du facteur $\frac{Q}{\sqrt{V}}$ à partir des données expérimentales du facteur de qualité Q . Ce rapport est normalisé par rapport son maximum qui vaut $(\frac{Q}{\sqrt{V}})_{\text{max}} = 36600 \mu\text{m}^{-\frac{3}{2}}$.

la variation de ce rapport dans l'intervalle 2-4 μm , mais plutôt par la densité de boîtes quantiques et par l'intervalle spectral libre souhaité.

5.5.2 Boîtes quantiques de GaAs en microdisques

Nous avons, dans la partie précédente, caractérisé le facteur de qualité à la transparence, c'est-à-dire en saturant l'absorption des boîtes quantiques d'InAs. Nous voulons maintenant savoir comment l'absorption des boîtes quantiques de GaAs modifie la largeur de la raie d'émission dans le mode à basse puissance. Rappelons que le critère d'observation du couplage fort est le suivant : à la résonance, le dédoublement de Rabi doit être supérieur à la largeur moyenne des états découplés. Nous devons donc connaître la largeur de la raie d'émission dans les modes de galerie aux puissances d'excitation auxquelles on observe simultanément les résonances de la cavité et les excitons de boîtes quantiques.

Par rapport aux microdisques contenant 3 plans de boîtes quantiques d'InAs, l'absorption par les états des boîtes quantiques dans les microdisques contenant des boîtes quantiques de GaAs est modifiée pour 2 raisons :

- D'une part, la densité de boîtes quantiques est beaucoup plus faible. Ce qu'il faut comparer, c'est plus exactement la densité d'états. La densité de boîtes quantiques d'InAs est de $4.10^{10} cm^{-2}$ par plan, réparties sur $75 meV$, soit une densité d'environ $10 \mu m^{-2}.meV^{-1}$. Les images STM et la spectroscopie conduisent à une estimation de la densité de boîtes quantiques de GaAs relativement faible, d'environ 1 à $5 \mu m^{-2}$, répartie sur 10 meV, soit une densité d'environ 0.1 à $0.5 \mu m^{-2}.meV^{-1}$, donc de 20 à 100 fois moins importante.
- D'autre part, la force d'oscillateur et donc l'absorption des boîtes quantiques de GaAs est plus grande. Supposons l'absorption typiquement 30 fois plus grande dans les boîtes quantiques de GaAs.

Les ordres de grandeur de ces variations, estimées grossièrement, montrent alors que le produit de la densité d'états par l'absorption (et donc (Q_{abs})) est globalement conservé, voire diminué d'un facteur 3.

La figure 5.25 présente un spectre, sur lequel les raies discrètes correspondent soit à l'émission d'excitons de boîtes quantiques soit à l'émission du fonds continu filtré par les modes de galerie. Nous verrons au chapitre suivant comment les distinguer. Les raies d'émission dans les modes sont pour l'instant identifiées par une flèche. La largeur à mi-hauteur des modes WG_{Ma,b,c} est respectivement de 95, 100 et $180 \mu eV$. Cette mesure prouve qu'avec une densité si faible de boîtes quantiques, il est possible de mesurer une émission dans les modes à basse puissance, avec des raies d'émission de largeur typique de 100 à $200 \mu eV$.

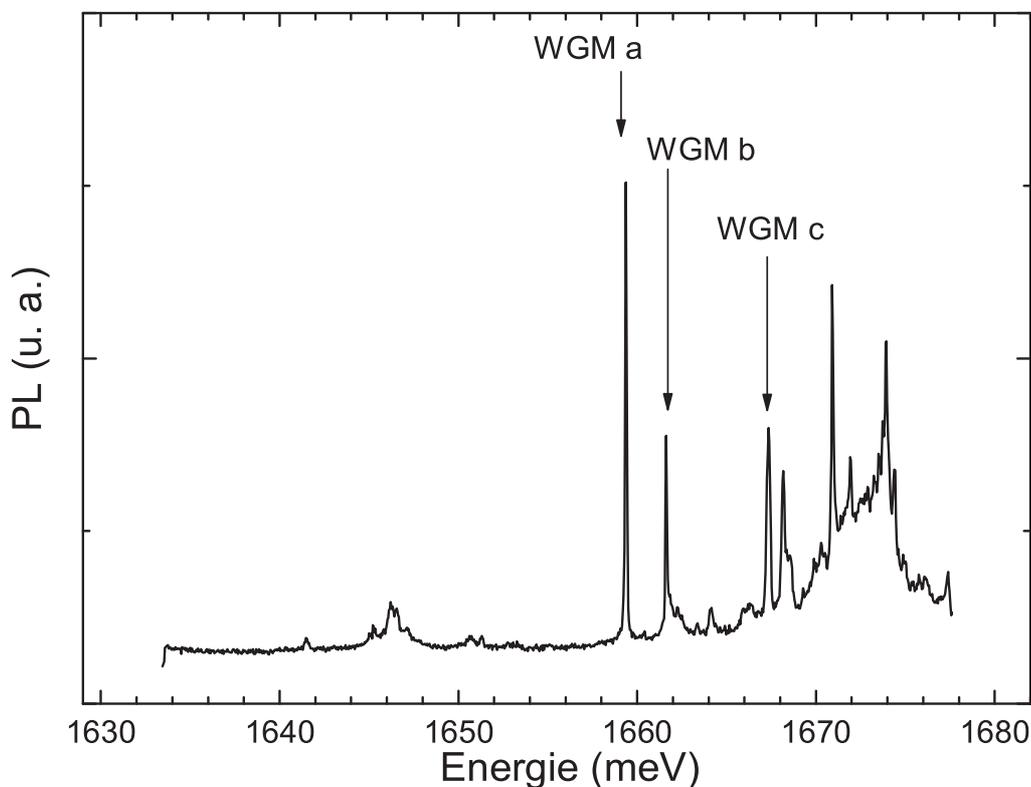


FIG. 5.25 – Spectre d’émission obtenu sur microdisque unique à basse puissance à 4 K. Les modes de galerie sont identifiés par les flèches.

5.5.3 Diagramme de rayonnement des modes de galerie

De nombreuses caractérisations de microdisques dans la littérature [127, 133, 31] utilisent un montage de micro-photoluminescence avec collection du signal à incidence normale. Rappelons qu’intrinsèquement l’émission dans les modes de galerie a lieu dans le plan du disque : les rayons se propageant par réflexion totale interne, ils restent contenus dans le plan d’incidence en vertu des lois de Descartes. La réflexion totale interne donne lieu à une onde évanescente à l’extérieur du disque qui devient propagative au-delà d’une certaine distance. Il en résulte une émission dans le plan équatorial du disque. Néanmoins, si la surface est rugueuse, les photons vont diffuser sur les rugosités. Les résidus de masque créent par exemple des défauts diffusifs, qui re-dirigent, au moins en partie, l’émission du disque dans la direction normale au plan du disque. Après amélioration du retrait du masque, nous n’observons plus d’émission à incidence normale. Il devient impératif d’incliner l’échantillon pour collecter le signal des modes de galerie. Pour cela, nous collons l’échantillon sur un support incliné avec un angle d’inclinaison de $i = 70$ degrés. L’utilisation d’un tel porte-échantillon permet de collecter l’émission dans le plan du disque comme illustré sur le schéma 5.26. Ce dernier paragraphe est consacré à l’étude du diagramme de rayonnement des modes de galerie

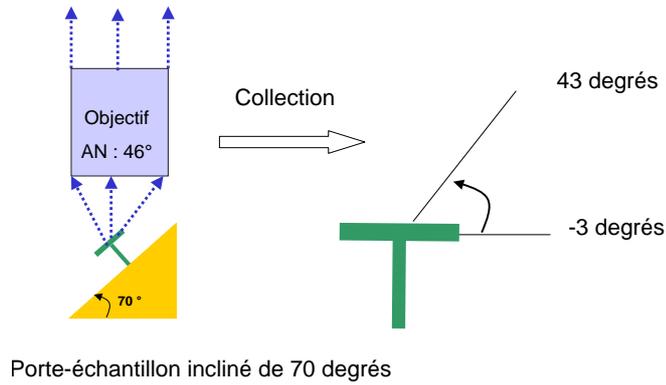


FIG. 5.26 – Schéma du porte-échantillon incliné permettant la collection du signal émis dans le plan du disque entre -3 et 43 degrés.

dans les microdisques que nous avons réalisés. Les mesures ont été effectuées sur l'échantillon dont la zone active est constituée de boîtes quantiques de GaAs.

Micro-photoluminescence résolue en angle Pour obtenir le diagramme de rayonnement, nous avons ajouté au dispositif expérimental une résolution angulaire, selon le principe schématisé sur la figure 5.27 :

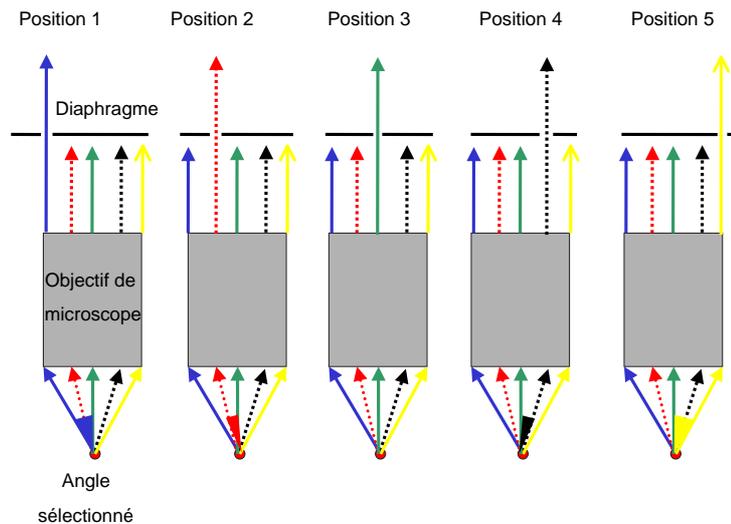


FIG. 5.27 – Schéma du principe de la sélection angulaire obtenue par déplacement d'un diaphragme. Chaque position du diaphragme sélectionne un rayon résultant de l'émission dans un certain angle, indiqué schématiquement dans la partie inférieure de la figure.

On utilise un diaphragme placé derrière l'objectif de microscope permettant la collection du signal sélectionné. Le diaphragme est déplacé perpendiculairement au faisceau. Chaque position du diaphragme sélectionne une plage angulaire d'émission. Pour cela, nous supposons que l'émetteur est ponctuel. Ceci est justifié par la taille du microdisque ($2 \mu m$), faible devant la largeur du faisceau ($8 mm$).

Diagramme de rayonnement Afin de préserver un signal suffisant tout en ayant une bonne résolution angulaire, nous effectuons des mesures à très forte puissance. On obtient un spectre pour chaque position du diaphragme. La figure 5.28 montre des spectres pour quelques positions de diaphragme. Pour nous affranchir de la réponse angulaire du dispositif expérimental, nous mesurons dans les mêmes conditions l'émission du GaAs d'un échantillon non incliné (voir figure 5.29). L'intensité d'émission du GaAs variant en fonction de l'angle de collection θ comme $\cos^2(\theta)$, pour θ variant de -23° à $+23^\circ$, cette intensité est quasiment indépendante de l'angle dans la plage angulaire considérée.

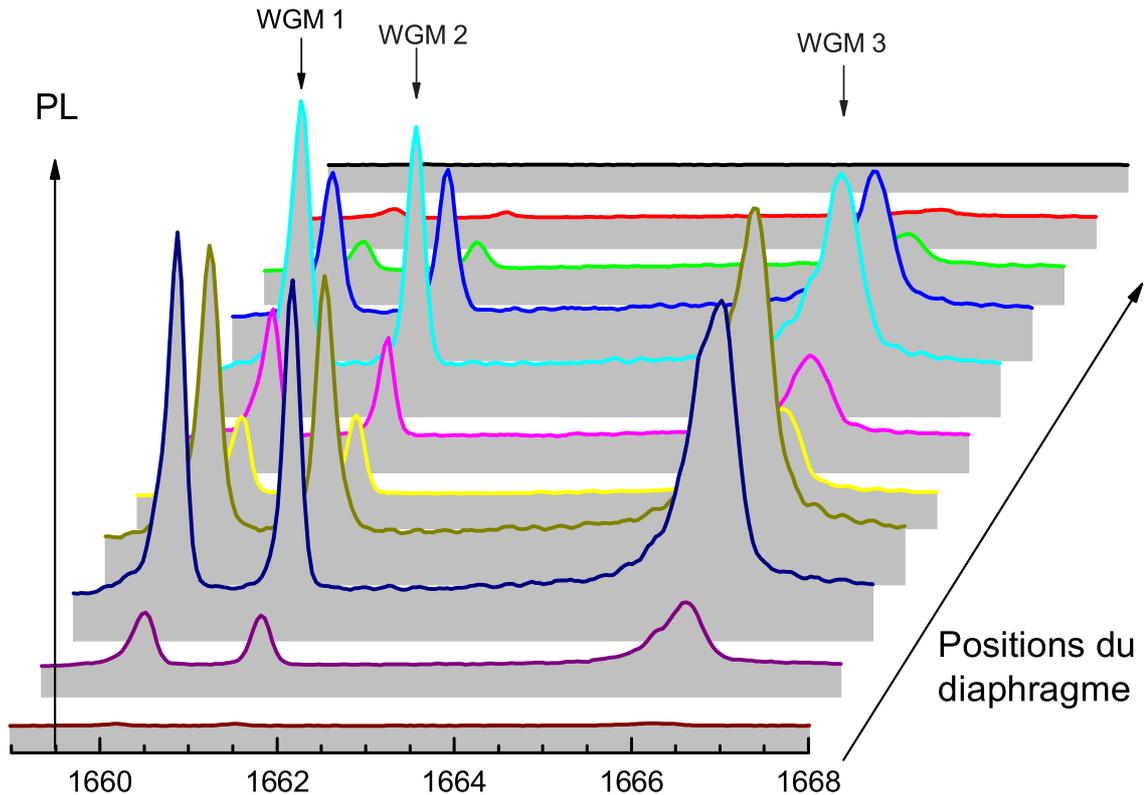


FIG. 5.28 – Spectres obtenus sur un microdisque contenant des boîtes quantiques de GaAs. On distingue 3 modes de galerie, dont l'intensité dépend de la position du diaphragme. Les spectres sont décalés horizontalement et verticalement pour améliorer la visibilité.

La figure 5.29 montre la courbe servant de normalisation, en reportant, pour chaque position du diaphragme l'intensité collectée pour le GaAs massif. Nous normalisons nos mesures à cette courbe. Nous avons vérifié, en tournant le porte-échantillon de 180° que les mesures sont symétriques par rapport à l'angle droit. Après normalisation, on obtient le diagramme de rayonnement symétrisé par rapport à l'angle droit, représenté sur la figure 5.30.

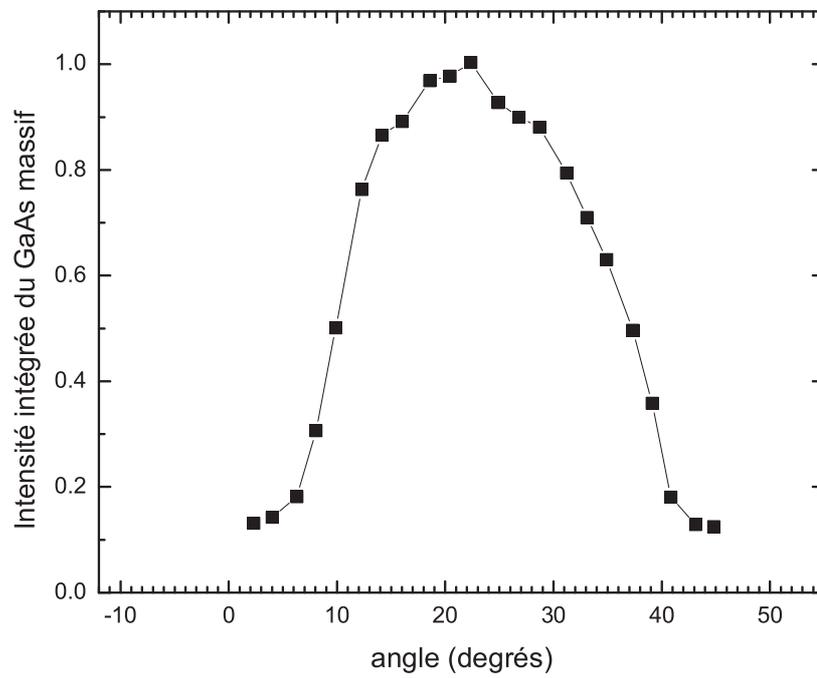


FIG. 5.29 – Intensité du GaAs massif en fonction de l'angle de collection servant à normaliser l'intensité de photoluminescence des modes.

L'intensité en fonction de l'angle présente un maximum centré sur 5° (et son supplémentaire) et un maximum secondaire à 25° (et son supplémentaire). La largeur à mi-hauteur du pic principal est de 5° ; l'émission est donc extrêmement directive, beaucoup plus que l'émission des lasers émettant par la tranche de même épaisseur, donnée par [145] : $\tan^{-1} \frac{4\lambda}{\pi e} \simeq 70^\circ$.

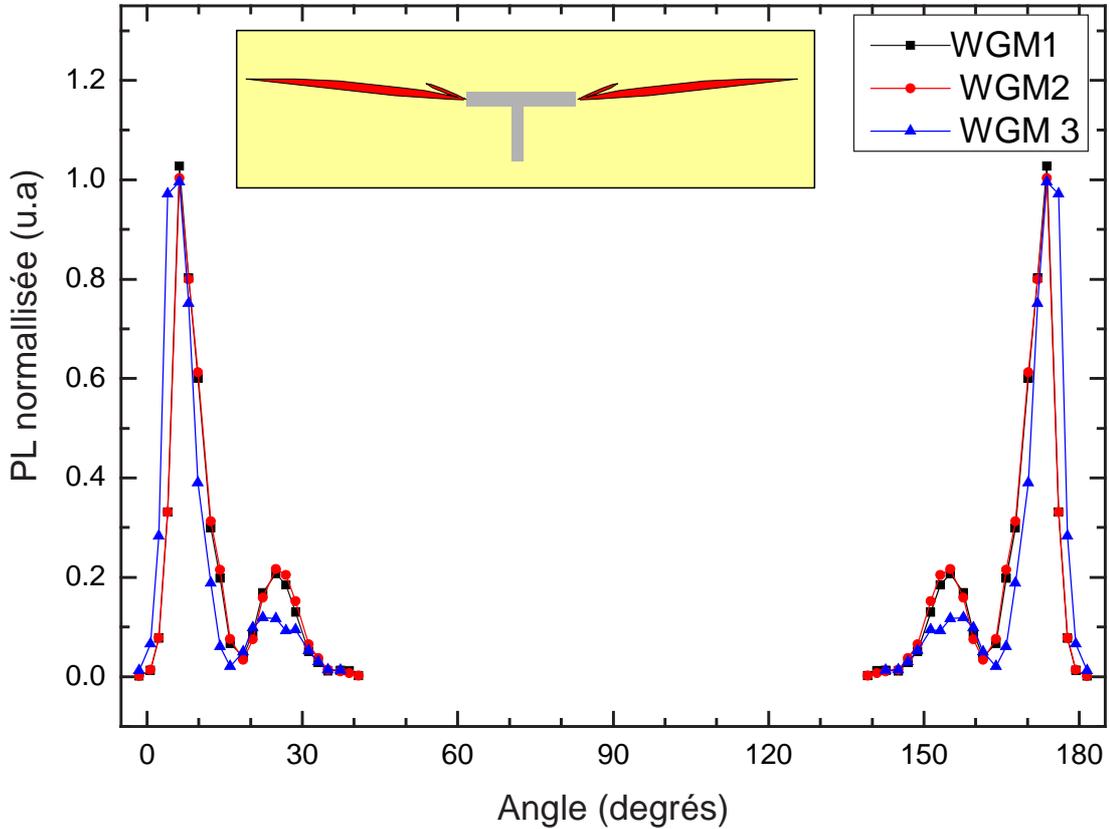


FIG. 5.30 – Intensité de photoluminescence sur les 3 modes de galerie WGM1-2-3 en fonction de l'angle de collection. Insert : Schéma du microdisque et représentation du diagramme de rayonnement en coordonnées polaires entre 0 et 180 degrés.

Un article, intitulé "Far-field emission narrowing effect of microdisk lasers" [146] étudie le diagramme de rayonnement de microdisques placés au bord d'un échantillon, de sorte à éliminer les interférences causées par la réflexion du substrat. Les auteurs montrent que l'émission a lieu dans le plan du disque avec une ouverture angulaire de 22° , pour un microdisque de $4.3 \mu m$ de diamètre, et de 200 nm d'épaisseur et une longueur d'onde d'émission $\lambda = 1.5 \mu m$. Les auteurs montrent également que cette valeur est bien inférieure à la valeur donnée par la formule de diffraction de Fraunhofer. Ils développent une théorie scalaire de la diffraction en coordonnées cylindriques, qui rend compte des données expérimentales et est également en accord avec des calculs numériques basés sur la théorie vectorielle de la diffraction. Leur théorie explique pourquoi l'émission est plus étroite que dans le cas d'une source planaire de même épaisseur. La principale différence vient du fait que pour les microdisques, la distribution angulaire d'intensité n'est pas simplement le carré de la transformée de Fourier du champ proche $|F(\theta)|^2$, mais est divisée par un facteur supplémentaire reflétant la géométrie du système et qui dépend du diamètre du microdisque :

$$I(\theta) \propto \frac{1}{r^2} \left| \frac{F(\theta)}{H_m^{(2)}(ka \cos \theta)} \right|^2 \quad (5.64)$$

où $H_m^{(2)}$ désigne la fonction de Hankel de seconde espèce, $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ le vecteur d'onde, a le rayon du microdisque. De plus, la largeur du terme $|\frac{1}{H_m^{(2)}(ka \cos \theta)}|^2$ étant bien inférieure à celle du terme de champ proche $|F(\theta)|^2$, elle gouverne complètement l'ouverture angulaire en champ lointain. Finalement, la distribution angulaire de l'intensité en champ lointain est donc simplement donnée par :

$$I(\theta) \propto \left| \frac{1}{H_m^{(2)}(ka \cos \theta)} \right|^2 \quad (5.65)$$

Ce terme dépend du rayon a du microdisque et du nombre azimutal m considéré.

Le rayon du disque sur lequel nous avons mesuré les diagrammes d'émission est évalué d'après des mesures effectuées sur les images obtenues au MEB : $a = 1.25 \mu m$. Le calcul de la distribution angulaire selon la formule 5.65 montre une émission centrée sur 0 degré avec une largeur de 21 degrés, représentée sur la figure 5.31, bien plus importante que celle que nous avons mesurée.

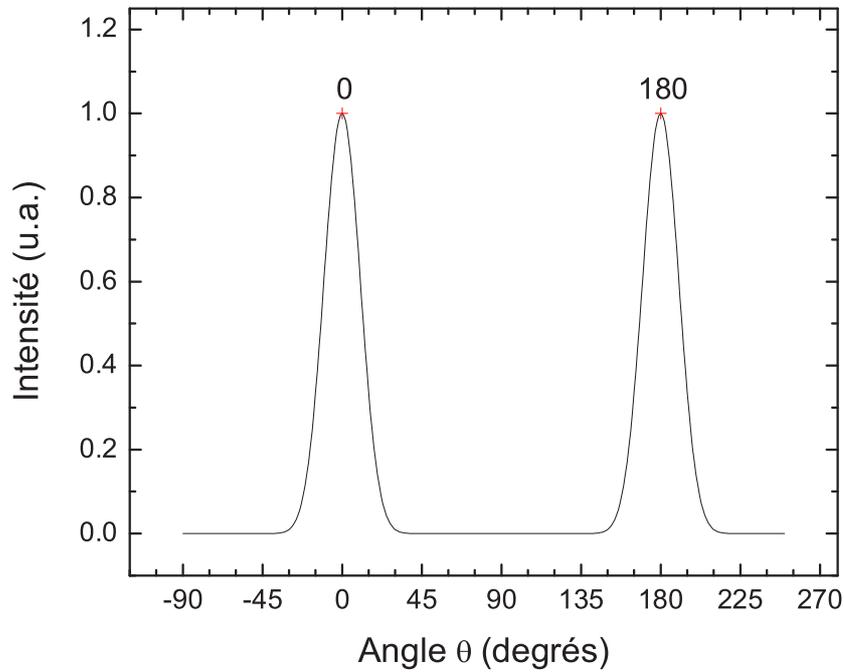


FIG. 5.31 – Distribution angulaire de l'émission dans un mode de galerie selon la formule 5.65, pour un rayon $a = 1.25 \mu m$, un vecteur d'onde $k = 8.4 \cdot 10^6 m^{-1}$ et un nombre azimutal $m = 18$. Les 2 maxima d'intensité sont centrés sur 0 et 180 degrés.

A la différence de l'article de Lee *et al.* [146], nos microdisques ne sont pas au bord de l'échantillon ; nous devons donc également calculer l'effet des interférences dues à la réflexion du substrat. En notant $d/2$ la distance du microdisque au substrat, l'intensité du champ lointain est proportionnelle à :

$$I(\theta) \propto \left| \frac{1}{H_m^{(2)}(ka \cos \theta)} \right|^2 |1 + r(\theta) e^{i \frac{2\pi}{\lambda} d \sin \theta}|^2 \quad (5.66)$$

où $r(\theta)$ désigne le coefficient de réflexion du substrat. Ce coefficient dépend de la polarisation du champ électrique. Pour une polarisation s , c'est-à-dire le champ électrique perpendiculaire au plan

d'incidence et le champ magnétique dans le plan d'incidence, il vaut :

$$r_s(\theta) = \frac{\sin(\theta) - n\sqrt{1 - \frac{(\cos(\theta))^2}{n^2}}}{\sin(\theta) + n\sqrt{1 - \frac{(\cos(\theta))^2}{n^2}}} \quad (5.67)$$

Pour une polarisation p , c'est-à-dire le champ magnétique perpendiculaire au plan d'incidence et le champ électrique dans le plan d'incidence, il vaut :

$$r_p(\theta) = \frac{n \sin(\theta) - \sqrt{1 - \frac{(\cos(\theta))^2}{n^2}}}{n \sin(\theta) + \sqrt{1 - \frac{(\cos(\theta))^2}{n^2}}} \quad (5.68)$$

La figure 5.32 représente le calcul de l'intensité $I(\theta)$ suivant la formule 5.66 pour ces 2 polarisations. La distance entre le disque et le substrat $d/2 = 1.35 \mu m$ est celle mesurée au MEB sur le microdisque correspondant. La profondeur de gravure est de $1.25 \mu m$, soit $d = 2.5 \mu m$. Cela montre que la gravure n'a pas atteint la couche de GaAs. L'indice utilisé pour la réflexion est donc celui de la partie riche en aluminium en $Al_{0.8}Ga_{0.2}As$, soit $n \simeq 3$.

La figure 5.32 permet de comprendre que :

- La réflexion sur le substrat affine la distribution angulaire : le calcul donne une largeur de 6.4 degrés pour les 2 polarisations.
- L'émission n'est plus centrée sur 0 (et 180) degrés. Le maximum d'émission se trouve à 6-7 degrés (et son supplémentaire).
- La réflexion crée un maximum secondaire, à 21 degrés (et son supplémentaire) pour la polarisation s , vers 18 degrés pour la polarisation p .

On constate un bon accord entre les mesures et le calcul pour la polarisation s . Ce calcul donne les bons ordres de grandeur pour l'ouverture angulaire et pour les angles des maxima. Néanmoins, on observe expérimentalement une plus grande importance relative du maximum secondaire. D'autre part, les modes TE et TM des microdisques sont en réalité un mélange des polarisations s et p . Une étude doit être menée dans l'équipe afin d'approfondir la compréhension de ces différents points.

L'émission dans les modes, à la fois dans le plan du disque, et sur 360° rend l'extraction de la lumière délicate : des tentatives ont été faites pour rendre l'émission directionnelle : citons par exemple la déformation du disque en forme d'oeuf [147], l'introduction d'un cran à la périphérie [148], la réunion de 2 disques [149]. Malheureusement, ces améliorations de la collection se font toutes au détriment du facteur de qualité. Une technique de collection apparue plus récemment, assez délicate à mettre en oeuvre repose sur le couplage de la lumière du disque au mode fondamental d'une fibre, dans la région de l'espace où le champ du mode de galerie est évanescent. Le travail de Srinivasan *et al.* [151] décrit cette technique et compare notamment, à puissance d'excitation égale, la puissance collectée au moyen de la fibre, à la collection "dans l'espace libre". Le gain obtenu est d'un facteur 30.

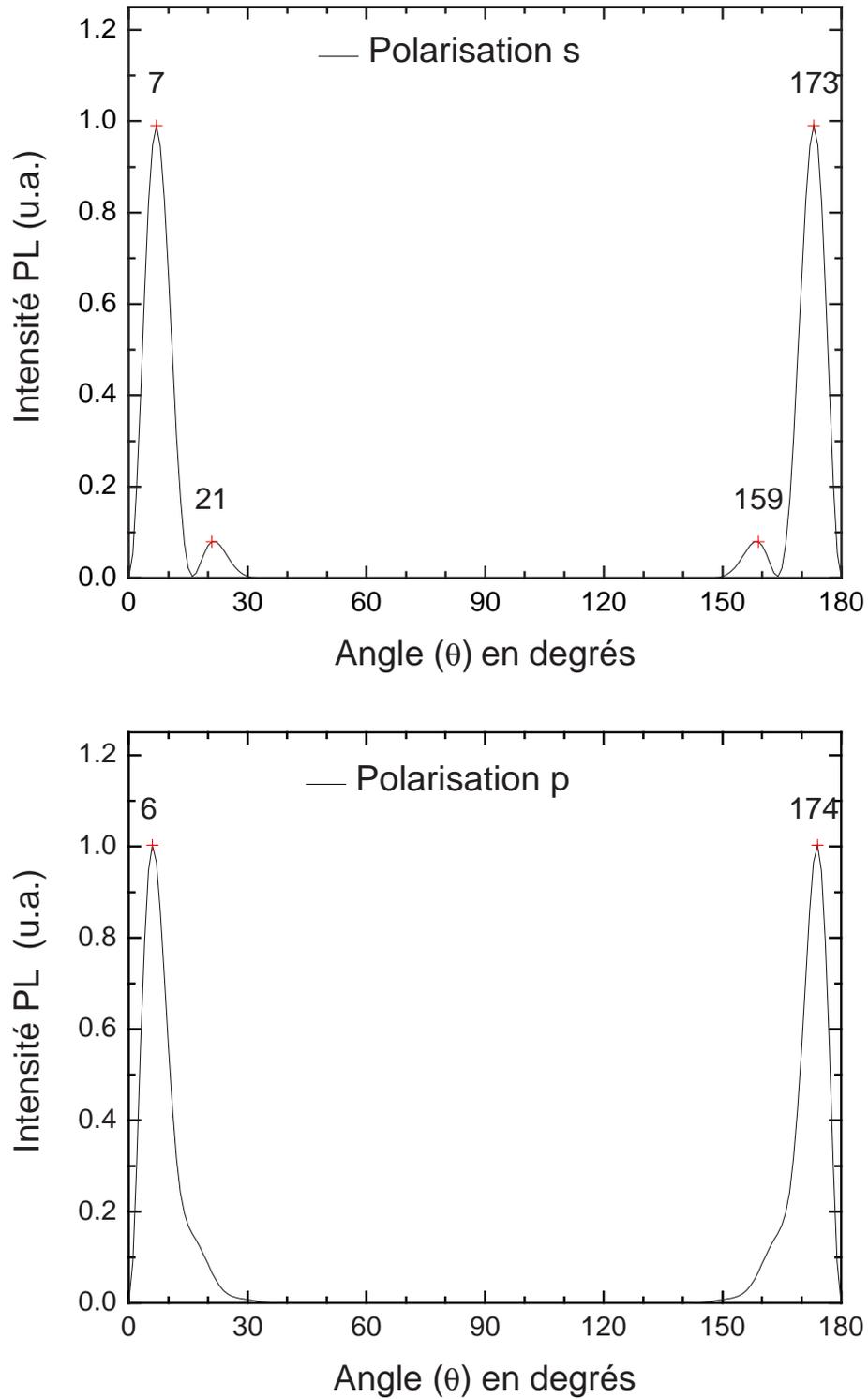


FIG. 5.32 – Distribution angulaire calculée pour les polarisations s et p pour un rayon $a = 1.25 \mu\text{m}$, un vecteur d'onde $k = 8.4 \cdot 10^6 \text{ m}^{-1}$, un nombre azimuthal $m = 18$ et une distance au substrat de $1.35 \mu\text{m}$. Les maxima d'intensité sont marqués d'une croix et leur abscisse indiquée sur le graphe en degrés.

Synthèse : Dans ce chapitre, nous avons montré que le confinement tridimensionnel dans les microdisques conduit à l'établissement de modes discrets, dont le facteur de qualité intrinsèque est très élevé, et qui sont confinés sur un volume de quelques $(\frac{\lambda}{n})^3$. L'intensité de ces modes, dits modes de galerie, est concentrée à la périphérie du microdisque.

Nous avons montré dans la seconde partie que nous pouvons fabriquer 2 types de microdisques : des microdisques "sur air" ou "sur AlOx". Dans les 2 cas, le facteur de qualité mesuré est de l'ordre de 12000 pour les microdisques de 2 à 3 μm . Comme nous l'avons montré par la suite, le rapport Q/\sqrt{V} le plus favorable à l'observation du régime de couplage fort est obtenu dans les microdisques de 2 à 3 μm de diamètre.

La faible densité de boîtes quantiques dans les échantillons de boîtes quantiques naturelles de GaAs permet d'observer ces modes à faible puissance, avec des largeurs de raie de 100 – 200 μeV , comparable aux largeurs de raie de l'exciton mesurées au chapitre 4.

Enfin, nous avons montré que l'émission dans les modes de galerie a lieu avec une ouverture angulaire très inférieure à celle d'un laser émettant par la tranche de même épaisseur, et affinée par les interférences avec la réflexion par le substrat.

Chapitre 6

Observation du couplage fort exciton-photon

Ce chapitre est consacré à la démonstration expérimentale du régime de couplage fort. Dans la partie 6.1, nous calculons le dédoublement de Rabi attendu dans le système boîtes quantiques de GaAs en microdisque, caractérisé dans les chapitres précédents. Puis, nous nous intéressons aux conditions d'accord spectral et d'accord spatial. Dans la partie 6.2, nous présentons la première observation du couplage fort pour une boîte quantique unique de GaAs insérée dans un microdisque, caractérisé par l'anticroisement à la résonance dans des expériences de micro-photoluminescence. Dans la partie 6.3, nous dressons l'état de l'art en 2006 du régime de couplage fort pour les systèmes 0D semi-conducteurs.

6.1 Conditions pratiques d'observation du régime de couplage fort

Dans cette première partie, nous calculons le dédoublement de Rabi attendu dans notre système. Nous examinons également la validité des hypothèses de calcul du dédoublement de Rabi du vide, faites au chapitre 1. Puis, nous nous intéressons dans le paragraphe 6.1.2 à la condition d'accord spatial entre le mode de cavité et l'émetteur. Enfin, dans le paragraphe 6.1.3, nous montrons que la condition d'accord spectral est relaxée partiellement par la température.

6.1.1 Dédoublement de Rabi

Le dédoublement de Rabi, calculé au chapitre 1, vaut à la résonance :

$$\hbar\Omega_R = 2\hbar\sqrt{\frac{\Omega_v^2}{4} - \left(\frac{\gamma_l - \gamma_e}{4}\right)^2} \quad (6.1)$$

où

$$\hbar\Omega_v = 2|\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle| = 2\hbar\sqrt{\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\pi e^2 f}{mV}} \quad (6.2)$$

γ_l et γ_e désignent les largeurs spectrales du mode et de l'émetteur. Nous avons vu au chapitre 1 qu'une condition suffisante pour que le système soit en couplage fort est : $\Omega_R > \frac{\gamma_l + \gamma_e}{2}$. L'ordre de grandeur typique de γ_e et γ_l est de $100 - 200 \mu eV$, comme nous l'avons vu respectivement aux chapitres 4 et 5. Nous avons également vu dans le chapitre 5 que les microdisques de rayon $a = 1 - 1.5 \mu m$ ont un rapport Q/\sqrt{V} optimal. Prenons $a = 1 \mu m$; le volume effectif est de $V = 6\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \simeq 0.07 \mu m^3$,

Le calcul du dédoublement de Rabi $\hbar\Omega_R$ avec l'ensemble de ces paramètres est représenté sur la figure 6.1. Le passage couplage faible/couplage fort a lieu pour $\hbar\Omega_R = 200\mu eV$ soit pour une force d'oscillateur $f = 25$. Cette valeur n'impose aucune condition supplémentaire sur les boîtes quantiques de GaAs, puisque leur force d'oscillateur est bornée inférieurement par la valeur expérimentale $f = 30$ (voir chapitre 3).

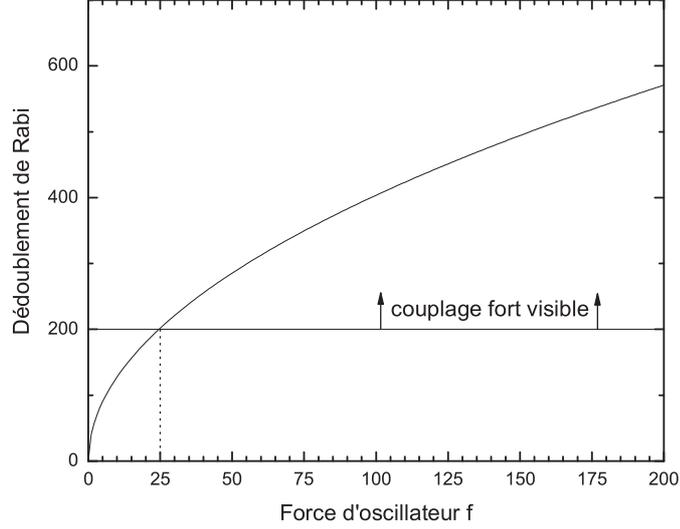


FIG. 6.1 – Calcul du dédoublement de Rabi en fonction de la force d'oscillateur pour un microdisque de rayon $a = 1\mu m$. La ligne horizontale matérialise la limite de visibilité du couplage fort. Elle intersecte la courbe pour une force d'oscillateur $f = 25$.

Rappelons les hypothèses sur lesquelles repose le calcul du dédoublement de Rabi du vide $\hbar\Omega_v$:

- L'émetteur se trouve au maximum du champ électromagnétique ;
- L'émetteur est ponctuel ;
- Les polarisations du dipôle et du champ électrique sont alignées.

Nous allons maintenant voir quelles sont les corrections à apporter en cas d'écart à ces hypothèses.

Corrections au modèle du dipôle ponctuel Pour calculer le terme de couplage dipolaire électrique, $\hbar\frac{\Omega_v}{2} = |\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle|$, nous nous sommes placés, par souci de simplicité, dans l'approximation du dipôle ponctuel (dite aussi des grandes longueurs d'onde). Dans cette approximation, la fonction d'onde de l'émetteur est une fonction delta de Dirac. Le calcul de l'intégrale sur l'espace $|\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle|$ est alors immédiat ; le champ est évalué uniquement à la position de l'émetteur. Cette approximation, valable pour des excitons confinés sur quelques nanomètres comme dans les boîtes quantiques d'InAs. Nous devons en revanche vérifier la pertinence de cette approximation dans les grandes boîtes quantiques.

Nous allons pour cela comparer l'extension du mouvement de centre de masse aux longueurs de variations du champ électromagnétique des modes de galerie. Nous avons vu que le champ électromagnétique est un produit de fonctions en r et θ :

- La dépendance radiale de la composante radiale du champ $E_r(r)$ dans le disque est donnée par $J_m(\frac{\omega n_{eff} r}{c})$ (voir chapitre 5). Pour le mode de galerie ($m = 21, n = 1$) s'établissant à l'énergie des boîtes quantiques de GaAs dans un microdisque de $1\mu m$ de rayon, l'extension

du champ électromagnétique est de l'ordre de 140 nm , et supérieure pour les modes de nombre radial supérieur ($m = 17, n = 2$) et ($m = 14, n = 3$).

- La dépendance angulaire de la composante E_θ du champ électrique est celle de $|\cos(m\theta)|$. La loi de variation de l'intensité du maximum le long du périmètre du cercle de rayon r_{max} est $|\cos(\frac{ms}{r_{max}})|$, où r_{max} désigne la distance au centre du disque pour lequel le champ est maximum, et s l'abscisse curviligne le long du périmètre du cercle de rayon r_{max} . La longueur de variation typique est donc $\Delta s = \frac{2\pi r_{max}}{3m} \simeq 90 \text{ nm}$, pour $m = 21$ et $r_{max} = 880 \text{ nm}$.

D'après les mesures TEM et STM, on évalue le diamètre maximal des boîtes quantiques vers $100\text{-}200 \text{ nm}$. L'extension du centre de masse de l'exciton correspondante est de $\xi \simeq 20 - 35 \text{ nm}$ dans l'approximation du puits de potentiel cylindrique, adapté aux plus grandes boîtes quantiques (voir le chapitre 3 pour la relation entre ξ et le diamètre de la boîte quantique). L'extension du centre de masse est donc faible comparée aux longueurs de variations typiques du champ en r et en θ . Nous en concluons que l'approximation du dipole ponctuel est correcte, y compris dans les plus grandes boîtes quantiques.

Correction du couplage en fonction la polarisation Nous avons calculé le dédoublement de Rabi du vide en faisant l'hypothèse que la polarisation de l'exciton et du mode étaient colinéaires. Nous supposons que l'orientation du dipôle est aléatoire dans le plan (xy), car nous n'observons pas d'orientation des boîtes quantiques dans une direction préférentielle, d'après les images STM. Le dédoublement de Rabi est à corriger dans chaque cas du cosinus de l'angle entre le dipole et le champ électrique. 2 cas sont à distinguer :

- Pour un mode de galerie ayant une polarisation TE, la seule composante non-nulle du champ est E_x (voir chapitre 5). La correction à apporter au dédoublement de Rabi sera la valeur absolue du cosinus de l'angle entre E_x et l'orientation du dipôle. Supposons que la force d'oscillateur moyenne des boîtes quantiques est de 100, nous allons estimer la probabilité d'observer le couplage fort. Le dédoublement de Rabi attendu pour $f = 100$ est de $400 \mu\text{eV}$, et la transition couplage faible-couplage fort a lieu pour un dédoublement de Rabi de $200 \mu\text{eV}$. La valeur absolue du cosinus de l'angle entre E_x et le dipôle doit donc être inférieure à $1/2$. D'où l'on en déduit que la probabilité d'observer le couplage fort avec une force d'oscillateur de $f = 100$ est de $2/3$.
- Pour un mode de galerie ayant une polarisation TM, le champ électrique a 2 composantes non-nulles, E_y et E_z (voir chapitre 5). La situation est donc moins favorable au couplage puisque seule la composante E_y pourra se coupler au dipôle. La probabilité de $2/3$ est diminuée du facteur E_y/E_z . Or, comme nous l'avons vu au chapitre 5, un spectre comporte des modes TE et TM en nombre comparable. La situation favorable de couplage au mode TE a donc une probabilité $1/2$.

6.1.2 Accord spatial

Le dédoublement de Rabi du vide $\hbar\frac{\Omega_v}{2} = |\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle|$ dépend linéairement de l'amplitude du champ électrique. Il varie donc comme la racine carrée de l'intensité de ce champ. Or, nous n'avons aucun contrôle sur la position de l'émetteur dans le microdisque. Nous allons donc essayer d'évaluer la probabilité d'occurrence d'une situation favorable conduisant à l'observation du couplage fort. Nous poserons le problème ainsi : supposons qu'un exciton soit résonant (spectralement) avec un

mode, quelle est alors la probabilité d'observer le couplage fort ?

La surface occupée par le champ dans le microdisque peut-être représentée par la surface effective, définie à l'image du volume effectif par :

$$S = \frac{\int \int n^2(r) \vec{E}^2(r) d^2 \vec{r}}{n^2 \vec{E}_{max}^2} \quad (6.3)$$

Le rapport de la surface effective sur la surface géométrique du disque $S/\pi a^2$ donne l'occupation du disque par une région de champ non-nulle. C'est donc la probabilité p que l'émetteur soit placé dans une région non-nulle du champ. La figure 6.2 montre les profils d'intensité des différents modes TE qui s'établissent à l'énergie des boîtes quantiques dans les microdisques de rayon $a = 1 \mu m$. Sous chaque profil est indiquée la probabilité $p = S/\pi a^2$ que l'émetteur soit dans une région d'intensité non-nulle pour le mode considéré. Cette probabilité est d'autant plus faible que le mode est plus confiné. Sur l'ensemble de ces modes, on obtient une probabilité moyenne de 15.3 % soit environ $\frac{1}{6}$. On obtient un résultat analogue pour les modes TM.

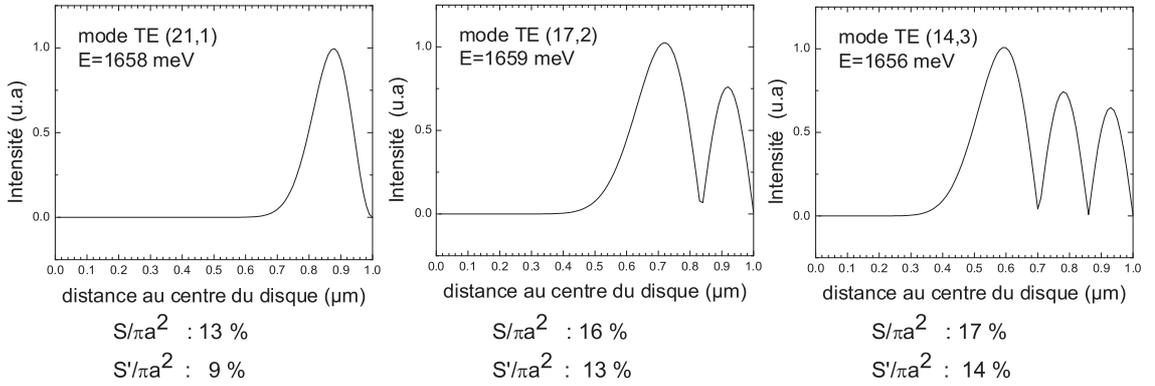


FIG. 6.2 – Profil d'intensité du champ électromagnétique du mode de galerie en fonction de la distance au centre du microdisque de rayon $a = 1 \mu m$ pour les modes de galerie de nombre radial $n = 1$ à 3 s'établissant à l'énergie d'émission des boîtes quantiques de GaAs.

Proximité de la surface : Comme le montre la figure 6.2, le maximum pour le mode $TE_{21,1}$ est à seulement 120 nm de la surface ; le mode $TE_{17,2}$ a un maximum secondaire à seulement 80 nm de la surface, le mode $TE_{14,3}$ à 70 nm. Or, la recombinaison radiative d'excitons des boîtes quantiques près de la surface peut être entravée par plusieurs difficultés : tout d'abord, les processus non-radiatifs deviennent plus efficaces pour les paires électrons-trous du puits quantique. Cela diminue l'efficacité de capture de ces paires dans la boîte quantique. D'autre part, des expériences dans les cristaux photoniques ont montré que la proximité d'une surface gravée peut engendrer un élargissement spectral important (quelques meV) [164]. Nous ajoutons alors une condition supplémentaire, en excluant la possibilité de couplage d'un mode de galerie avec une boîte quantique située à moins de 100 nm de la surface. Cette condition supplémentaire revient à corriger légèrement la surface effective. Les nouvelles surfaces effectives $S' = \int_{r=0}^{r=a-100nm} \vec{E}^2(r) d^2 \vec{r} / \vec{E}_{max}^2$ sont données sur la figure 6.2. Elles définissent de nouvelles probabilités $p' = S'/\pi r^2$ pour que l'émetteur soit placé dans une région non-nulle de l'intensité du mode considéré et à plus de 100 nm du bord du disque. Ces probabilités varient de 9 à 14 %. On retiendra donc de ce calcul que la proximité de la

surface restreint légèrement les possibilités d'accord spatial, sans empêcher le couplage de la boîte quantique, y compris avec le mode de nombre radial $n = 1$.

Dans les 2 paragraphes précédents, nous avons supposé qu'émetteur et mode de cavité sont résonants. Nous allons voir dans le paragraphe suivant comment l'accord spectral est obtenu.

6.1.3 Accord spectral

Pour accorder spectralement la transition de l'émetteur et le mode de cavité, nous avons choisi d'utiliser la température. En effet, comme nous allons le voir, les résonances de la cavité et les transitions excitoniques ont des dépendances avec la température différentes.

Les spectres d'émission d'un exciton de boîte quantique de GaAs isolée sont représentés à différentes températures sur la figure 6.3. La mesure est réalisée à faible excitation, afin d'avoir un contraste maximal de la raie excitonique par rapport au fond continu. La variation de l'énergie d'émission de la raie excitonique en fonction de la température est reportée sur la partie droite de cette figure. L'exciton se déplace de 2.1 meV vers les basses énergies entre 4 et 39K. Ce déplacement résulte

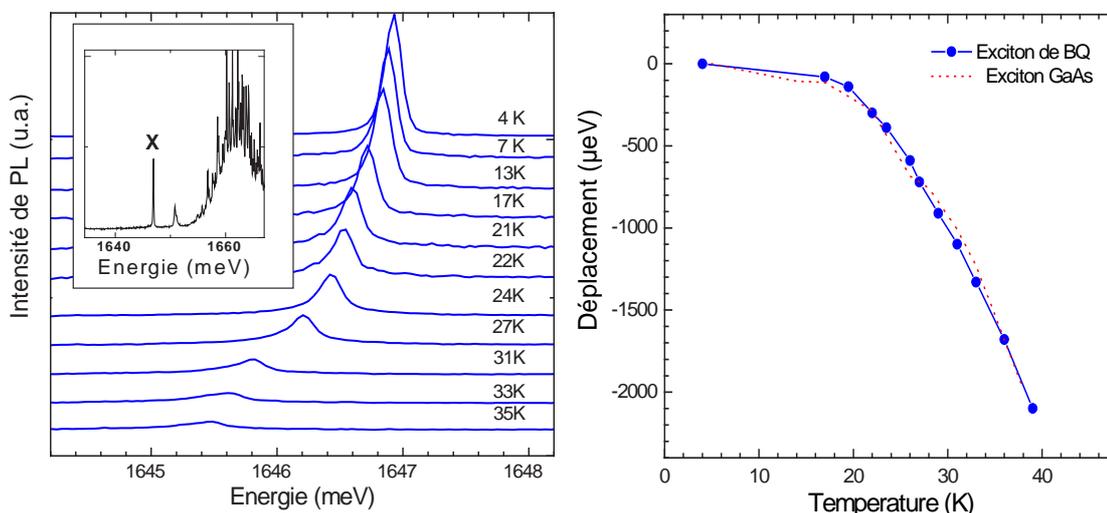


FIG. 6.3 – A gauche : Spectres de photoluminescence d'un exciton de boîte quantique entre 4 et 39 K. Insert : spectre de PL sur une plus grande fenêtre spectrale. A droite : Variation de l'énergie d'émission de l'exciton de boîte quantique (symboles ronds), et de l'exciton du GaAs massif (pointillés) en fonction de la température.

de la variation de bande interdite du GaAs en fonction de la température, sachant que l'offset de bandes GaAs/AlGaAs reste constant. Pour le vérifier, nous avons également mesuré la variation d'énergie d'émission d'un exciton du GaAs massif en fonction de la température. Comme on peut le voir sur la figure 6.3, les 2 courbes sont superposées. La variation d'énergie d'émission de l'exciton du GaAs est également en parfait accord avec la description théorique donnée dans la référence [157].

La figure 6.4 représente des spectres d'émission à différentes températures obtenues à forte puissance d'excitation sur un autre microdisque. En effet, à forte puissance, l'émission des boîtes quantiques, du puits quantique ou du fond continu sont filtrées par le(s) mode(s). On a pris garde de ne pas se placer dans des gammes de puissances telles que l'évacuation de la chaleur par le pied du disque n'est plus efficace. L'augmentation incontrôlée de la température induirait alors un déplacement énergétique supplémentaire incontrôlé de la raie d'émission.

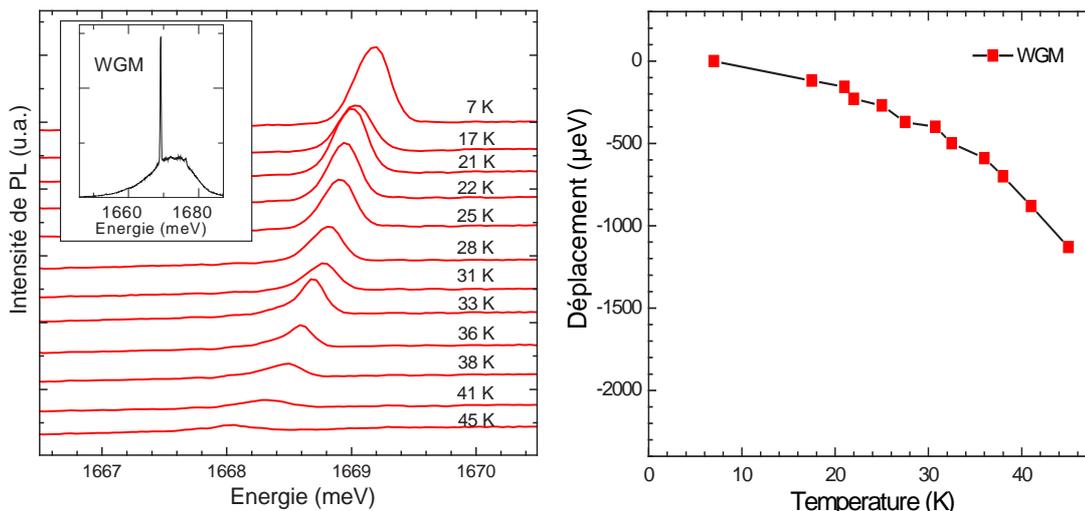


FIG. 6.4 – A gauche : Spectres de photoluminescence d'un mode de galerie entre 7 et 45 K. Insert : spectre de PL sur une plus grande fenêtre spectrale. A droite : Variation de l'énergie de la résonance optique en fonction de la température.

La partie droite de la figure reporte la variation de l'énergie d'émission de la résonance optique en fonction de la température. Le déplacement énergétique du mode de galerie est de seulement 1.3 meV entre 7 et 45 K. Il est dû à la variation d'indice du microdisque. A notre connaissance, il n'existe pas de description théorique de variation de l'indice d'AlGaAs entre 0 et 50 K. Néanmoins, le déplacement que nous observons est identique à celui observé par Kiraz *et al.* dans des microdisques similaires [31]. Les auteurs utilisent également la température dans le but de mettre en résonance l'exciton d'une boîte quantique et un mode de galerie de microdisque, comme nous l'avons décrit dans la section "Effet d'EDQC en régime de couplage faible" du premier chapitre. En résumé, le déplacement énergétique de l'exciton est plus fort que celui du mode. Nous pouvons tirer parti de cette différence pour obtenir un accord spectral de l'exciton et du mode entre 0 et 40 K sur une plage d'environ 1 meV .

Nous allons maintenant illustrer le rôle de la température sur des spectres de micro-photoluminescence pris sur un même disque, à basse puissance, à différentes températures. Sur la figure 6.5, on distingue plusieurs raies. Parmi ces raies, 2 sont visibles de 4 à 41 K et sont indiquées d'une flèche à chaque température. Les énergies d'émission de chacune de ces 2 raies sont reportées sur la figure de droite. Le déplacement de la raie WGM est identique à celui du mode de galerie caractérisé au début de ce paragraphe ($-720 \text{ } \mu\text{eV}$ entre 4 et 41 K). Le déplacement de la raie X est identique au déplacement de l'exciton caractérisé au début de ce paragraphe (-2.4 meV entre 4 et 41 K).

En résumé, les dépendances différentes des énergies d'émission de l'exciton et du mode de galerie permettent :

- l'identification des raies d'émission. Nous avons vu que l'identification des modes peut également être obtenue grâce à la puissance. L'insert de la figure 6.5 montre un spectre à 4 K, obtenu à forte puissance sur le même microdisque, sur une fenêtre spectrale plus grande. La raie discrète visible superposée à la raie large d'émission du puits quantique correspond à l'émission dans le mode de galerie WGM.
- l'accord spectral sur une plage d'environ 1 meV d'un exciton et d'un mode de galerie.

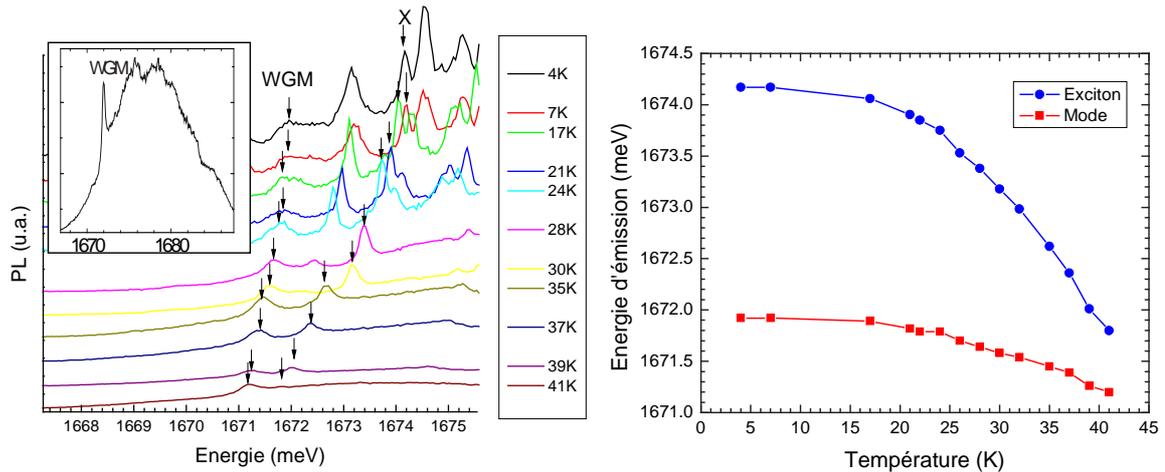


FIG. 6.5 – A gauche : Spectres de photoluminescence obtenu sur un microdisque unique à différentes températures entre 5 et 49K. Insert : spectre à forte puissance à 4 K sur une échelle d'énergie plus grande faisant apparaître le mode WGM. A droite : Energie d'émission des 2 raies principales en fonction de la température.

6.2 Observation du régime de couplage fort

Dans cette seconde partie, nous allons décrire la première observation expérimentale du régime de couplage fort pour un exciton localisé par une boîte quantique de GaAs en microdisque. Dans le premier paragraphe, nous étudions la signature spectrale de ce régime, à savoir l'anticroisement à la résonance. Nous montrons dans le second paragraphe comment l'intrication lumière-matière des états-mixtes produits dans ce régime de couplage se manifeste dans l'évolution des largeurs de raie en fonction du désaccord.

6.2.1 Signature spectrale : l'anticroisement

Considérons la figure 6.6. On distingue 5 raies dont l'énergie varie avec la température selon le déplacement (caractérisé dans la section précédente) des modes de galerie, et 3 raies dont l'énergie varie selon le déplacement (caractérisé dans la section précédente) de la transition excitonique.

Les spectres présentés mettent en évidence la difficulté expérimentale suivante : du fait de l'ouverture finie de l'objectif de microscope par lequel est collecté le signal, et du fait que les diagrammes d'émission dans les modes de galerie ou hors des modes de galerie sont différents, il n'est pas possible de trouver des conditions de collection optimales pour les 2. Dans les conditions expérimentales qui correspondent à cette figure, la collection de l'émission dans les modes de galerie est privilégiée. Par conséquent, les excitons ne sont clairement visibles que lorsqu'ils sont couplés aux modes. Cette augmentation du signal excitonique est particulièrement claire sur l'exciton croisant un mode à 1665 meV à $T=35\text{K}$.

Considérons les 2 pics, notés A et B sur la figure 6.6. Leur déplacement énergétique, guidé par les traits pleins, ne correspond ni au déplacement caractéristique d'un mode de cavité, ni au déplacement caractéristique d'un exciton. La figure 6.7 présente un spectre centré sur ces 2 pics ainsi que le relevé de leur énergie d'émission en fonction de la température.

Entre 4 et 30 K, le déplacement de la raie B est plus important que celui de la raie A. Cela nous conduit à identifier la raie B comme raie "excitonique" et la raie A comme raie "photonique".

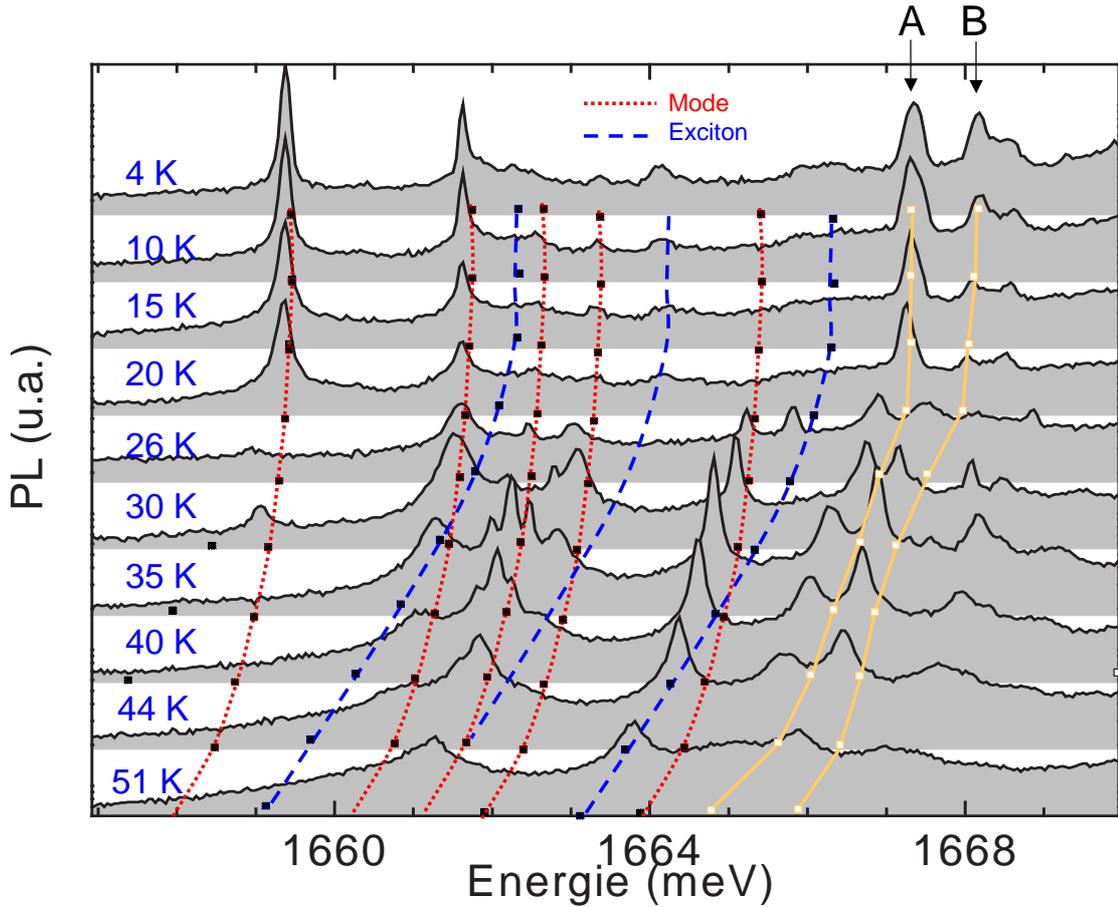


FIG. 6.6 – Spectres de photoluminescence obtenus sur un microdisque unique entre 4 et 51 K en échelle lin-log. Les différents pointillés sont des guides pour suivre le centre de chaque raie aux différentes températures et reproduisent les déplacements caractéristiques de l’exciton (tirets) ou du mode de galerie (points). Les traits pleins guident le déplacement de 2 raies A et B, ne pouvant être identifiées ni comme exciton ni comme mode de galerie.

Au-delà de 30 K, l’identification s’inverse : l’énergie de la raie A variant plus fortement que celle de la raie B, elle devient la raie excitonique, tandis que la raie B devient la raie photonique.

Plus quantitativement, la figure 6.8 compare les déplacements de chacun de ces raies aux déplacements caractéristiques de l’exciton et du mode de galerie. On constate qu’effectivement, la raie B, raie haute énergie (resp. A, raie basse énergie) a un déplacement de type excitonique (resp. photonique) à basse température. A la température de la résonance, à 30 K, on observe un anti-croisement, qui est la signature du régime de couplage fort. Au-delà de 30 K, c’est la raie A, raie basse énergie (resp. B, raie haute énergie) qui a un déplacement de type excitonique (resp. photonique).

En reprenant les notations introduites au chapitre 1, les 2 raies résultent de la désexcitation des 2 états fortement couplés $|\psi_{\pm 1}\rangle$ vers le fondamental $|\psi_0\rangle$. Loin de la résonance, les états sont quasiment découplés et correspondent aux états $|g, 1\rangle$ (l’état fondamental+un photon dans le mode) et $|e, 0\rangle$ (état excité et cavité vide). En s’approchant de la résonance, les états s’intriquent progressivement. A la résonance, l’intrication est maximale : les 2 états sont moitié exciton/ moitié

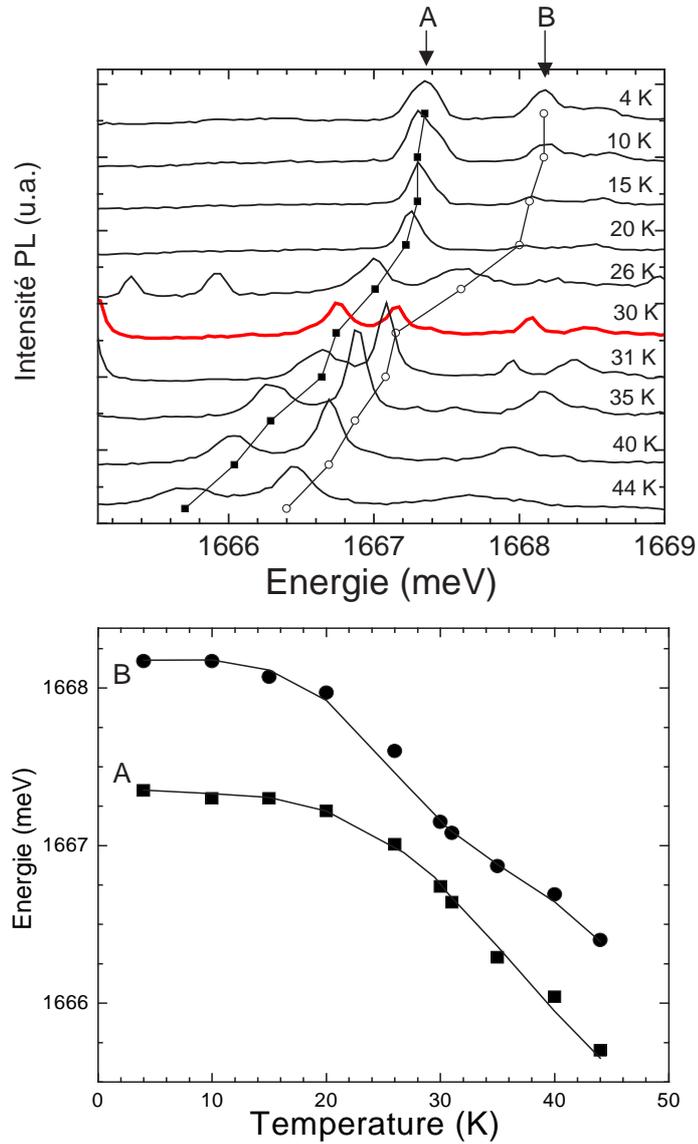


FIG. 6.7 – En haut : Agrandissement centré sur $E = 1667$ meV de la figure précédente. En bas : relevé des énergies d'émission pour chacune des 2 raies en fonction de la température.

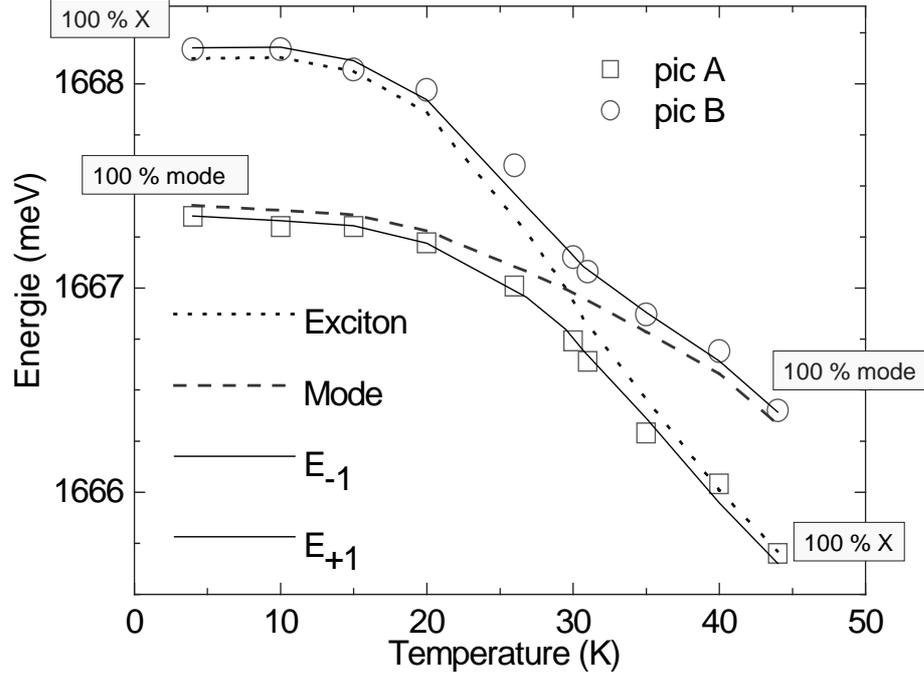


FIG. 6.8 – Symboles : énergie d’émission mesurés en fonction de la température. Traits pleins : Energies calculées d’après la formule 6.4. Pointillés : déplacements caractéristiques d’un exciton (points) et d’un mode de galerie (tirets).

photon.

$$\begin{cases} |\psi_{+1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g, 1\rangle + i|e, 0\rangle) \\ |\psi_{-1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(i|g, 1\rangle + |e, 0\rangle) \end{cases}$$

Les énergies des 2 états couplés $|\psi_{\pm 1}\rangle$ se calculent grâce à la formule vue au chapitre 1 :

$$E_{\pm 1}(T) = \frac{\hbar\omega_e(T) + \hbar\omega_l(T)}{2} \pm \frac{\hbar}{2} \sqrt{(\omega_e(T) - \omega_l(T))^2 + \Omega_v^2 - \left(\frac{\gamma_l - \gamma_e}{4}\right)^2}$$

où $\hbar\omega_l(T)$ et $\hbar\omega_e(T)$ sont les énergies des états non couplés exciton et mode de galerie. Ces énergies calculées sont représentées en traits pleins sur la figure 6.8. Nous obtenons un très bon accord avec les énergies relevées sur les spectres avec un dédoublement de Rabi du vide $\hbar\Omega_v = 400 \mu eV$.

6.2.2 Signature de l’intrication lumière-matière sur les largeurs de raie

Intéressons-nous maintenant à l’évolution des largeurs de raies entre 4 et 45 K. A basse température, les états sont quasiment découplés. La raie B, excitonique, a une largeur d’environ $240 \mu eV$. Cette largeur n’est pas purement radiative (elle correspondrait à un temps radiatif de 2.5 ps), mais résulte des processus de déphasage étudiés au chapitre 3 [158, 159]. La raie A, photonique à basse température, a une largeur d’environ $160-170 \mu eV$. Le facteur de qualité correspondant est de 10000. La raie du mode est donc plus fine que la raie excitonique. En variant la température et donc le désaccord, l’échange des caractères photonique et excitonique des 2 raies se manifeste aussi, comme le montre la figure 6.9, dans l’échange de leur largeur :

- Hors résonance, la raie majoritairement excitonique est toujours la plus large des deux, avec une largeur à peu près constante jusqu’à 40 K ($\sim 240 \mu eV$). Au-delà de 40 K, l’élar-

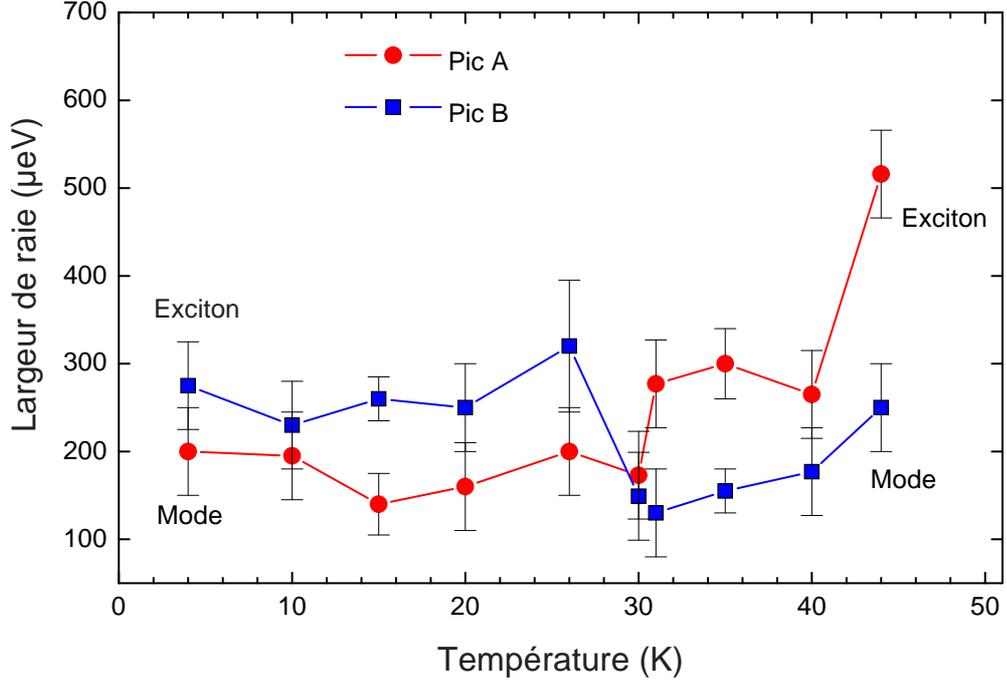


FIG. 6.9 – Largeur spectrale des raies du doublet en fonction de la température. La raie basse énergie correspond aux symboles carrés, la raie haute énergie aux ronds.

gissement dû aux processus de déphasage (interaction avec les phonons acoustiques et avec l’environnement coulombien) devient très important pour cette raie. La raie majoritairement photonique reste la plus fine avec une largeur à peu près constante jusqu’à 40 K ($\sim 170 \mu\text{eV}$).

- A la résonance, où les états sont mi-exciton, mi-photon, les 2 raies du doublet ont la même largeur (voir la figure 6.10), comme attendu théoriquement. Cette largeur vaut $170 \mu\text{eV}$. Elle est donc légèrement inférieure de $30 \mu\text{eV}$ à la largeur attendue théoriquement. En effet, nous avons vu au chapitre 1 que la largeur des résonances est théoriquement la moyenne des largeurs des 2 raies non-couplées, ici $200 \mu\text{eV}$.

6.2.3 Etude du doublet de Rabi

A la résonance, les 2 états-couplés sont séparés de l’énergie $\hbar\Omega_R = 410 \mu\text{eV}$ (voir figure 6.10). Nous avons déjà mentionné que les conditions de collection du signal sont différentes pour l’exciton et pour le mode, du fait de leurs différents diagramme de rayonnement. A la résonance, ce problème disparaît : sur la figure , nous constatons qu’à la résonance, les 2 états habillés ont la même intensité. Cela s’explique par le fait que chacun étant mi-exciton/ mi-photon de cavité, leurs diagrammes d’émission sont nécessairement identiques. Dans l’hypothèse où la boîte quantique est placée exactement au maximum du champ électromagnétique, et où son dipole est parfaitement aligné avec la polarisation du mode supposée TE, le dédoublement de Rabi du vide est relié à la force d’oscillateur par l’égalité :

$$\frac{\hbar\Omega_v}{2} = \hbar\sqrt{\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\pi e^2 f}{mV}} \quad (6.4)$$

Du dédoublement de Rabi du vide de $400 \mu\text{eV}$, on déduit une force d’oscillateur de 100 dans les conditions optimales citées ci-dessus. En se référant au calcul de force d’oscillateur en fonction de

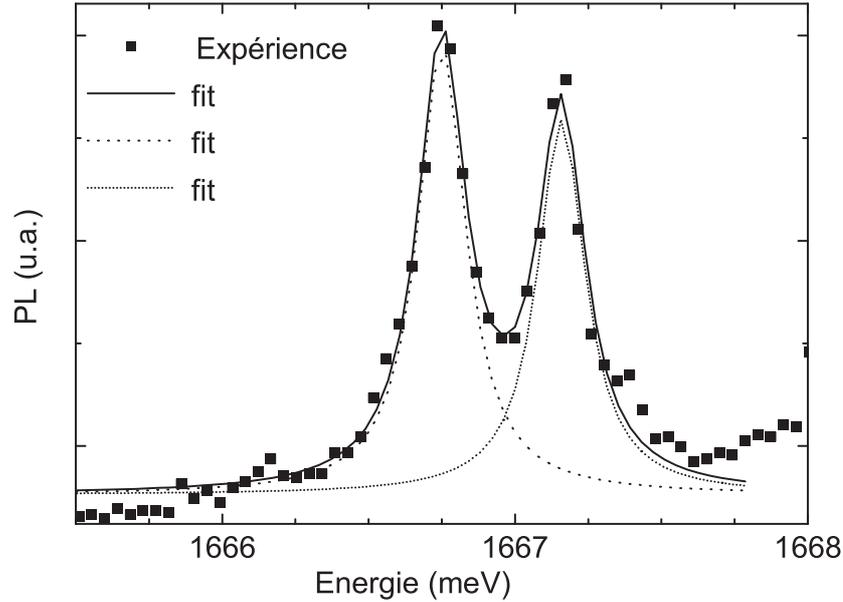


FIG. 6.10 – Carrés : Spectre d’émission à la résonance. Tirets et pointillés : fits lorentziens de chacun des pics. Trait plein : somme des 2 lorentziennes.

la taille de la boîte quantique [56] on en déduit une taille de boîte quantique de 44 nm , cohérente avec les tailles typiques de boîtes quantiques mesurées en STM et en TEM (voir chapitre 2). En résumé de cette section, nous avons démontré par des expériences de photoluminescence résolues spectralement le régime de couplage fort pour une boîte quantique unique de GaAs en microdisque. Le dédoublement de Rabi obtenu est de $410\ \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie de $200\ \mu\text{eV}$. Nous avons également étudié l’influence du désaccord sur les largeurs de raie des états habillés, et avons montré que leur évolution est une signature supplémentaire de l’intrication de ces états.

6.3 Etat de l’art du couplage fort dans les systèmes 0D semi-conducteurs

De 2004 à 2006, le couplage fort a également été obtenu par 3 autres groupes, chacun utilisant des systèmes différant à la fois par l’émetteur et par la cavité utilisés. Il est intéressant d’analyser ces réalisations car elles ont emprunté des stratégies différentes dans la quête de maximisation du rapport $Q\sqrt{\frac{f}{V}}$.

6.3.1 Boîte quantique d’InAs en cristaux photoniques

Description du système Le groupe américain constitué de T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin et D. G. Deppe a démontré le régime de couplage fort pour une boîte quantique d’InAs ($f = 10$) insérée dans une cavité à cristaux photoniques [160]. Nous avons vu, au premier chapitre, que le couplage fort n’était pas accessible avec ces cavités à l’état de l’art en 2003. Les cristaux photoniques ont fait depuis des progrès technologiques géants. Le groupe de Noda [161] a fabriqué en 2003 des nanocavités de silicium ayant des modes caractérisés par un facteur de qualité $Q = 45000$ et un volume effectif $V = 0.07\ \mu\text{m}^3$. La nanocavité réalisée pour l’observation du couplage fort [160] utilise la même

géométrie mais le silicium est remplacé par du GaAs pour la croissance de boîtes quantiques.

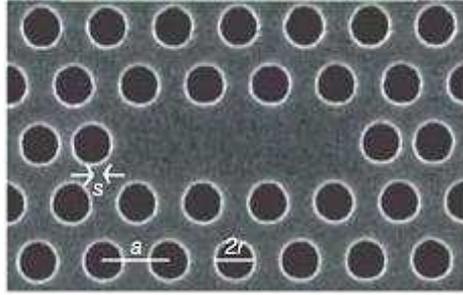


FIG. 6.11 – [160] Image obtenue au MEB de la nanocavité, montrant l'espacement entre les trous $a = 300 \text{ nm}$, le diamètre des trous $2r = 162 \text{ nm}$, et le décalage $s = 60 \text{ nm}$ de 2 des trous aux extrémités du défaut de périodicité créé par 3 trous manquants.

Le confinement vertical est obtenu par réflexion totale interne aux interfaces air/GaAs. Le confinement dans le plan est obtenu grâce à une membrane possédant un réseau triangulaire de trous, dans lequel un défaut de périodicité est créé par l'absence de 3 trous. Le concept-clé de Noda pour réduire les pertes est de mettre des trous aux bords du défaut de périodicité : "The light has to be confined gently in order to confine it strongly". Autrement dit, il faut éviter la situation où la fonction enveloppe du champ est stoppée abruptement, car sa transformée de Fourier a alors un important recouvrement avec les petits vecteurs d'onde du plan qui sont couplés aux modes de fuite.

Les cavités utilisées pour l'observation du couplage fort allient un confinement très fort de la lumière à un facteur de qualité qui reste grand (jusqu'à 18000). Le mode en couplage fort a un facteur de qualité de 13000 à forte puissance, quand l'absorption est blanchie. Aux puissances intermédiaires d'excitation où le couplage fort est observé, le mode est élargi par l'absorption des boîtes quantiques et son facteur de qualité est réduit à 8000. Son volume effectif est de $V = 0.04 \mu\text{m}^3$.

Observation du couplage fort La mise en résonance spectrale du mode de cavité et de l'émetteur repose également sur les différentes dépendances avec la température des énergies d'émission respectives du mode et de l'exciton. Le déplacement énergétique d'un mode de cavité est observé à très forte puissance d'excitation, de sorte à saturer les boîtes quantiques non-couplées au mode. Le spectre (figure 6.12a) est alors dominé par l'émission dans le mode de cavité. A cette puissance, le facteur de qualité du mode est de 13000. A plus faible puissance, on observe l'émission de boîtes quantiques non-couplées (figure 6.12b). Leur déplacement énergétique est plus important que celui du mode de cavité. Au centre, on observe un anticroisement entre un exciton et un mode de cavité, en résonance à 1182.6 nm (soit 1048.4 meV). Les énergies d'émission des 2 états fortement couplés sont reportées sur la figure 6.12c en fonction de la température, et comparées aux énergies des états non-couplés. L'anticroisement est caractérisé par un dédoublement de Rabi de $170 \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie de $130 \mu\text{eV}$.

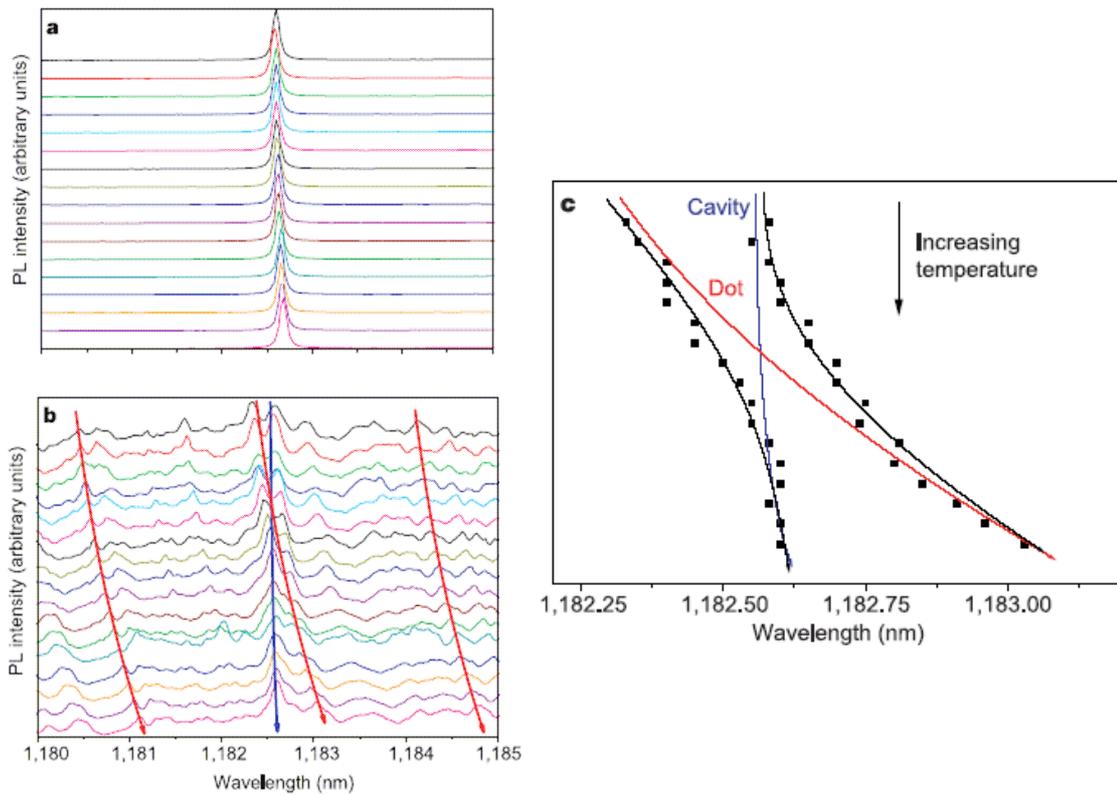


FIG. 6.12 – Anticroisement [160]. La température est variée de 13 K (en haut) à 29 K (en bas) par pas de 1 K. a-PL à forte puissance d'excitation. b-PL à faible puissance d'excitation. Les flèches indiquent les déplacements caractéristiques des excitons et modes non-couplés. c-Symboles : Evolution du système couplé avec la température (les traits pleins sont des guides) comparé au système non-couplé (traits clairs).

6.3.2 Boîte quantique d'InGaAs en micropiliers

Description du système Le couplage fort exciton-photon a également été observé avec des boîtes quantiques d'In(Ga)As en micropiliers [41] dans le groupe allemand constitué de J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke et A. Forchel. L'effort de recherche de ce groupe a essentiellement porté sur la fabrication d'un nouveau type de boîtes quantiques, en vue d'atteindre de grandes forces d'oscillateur.

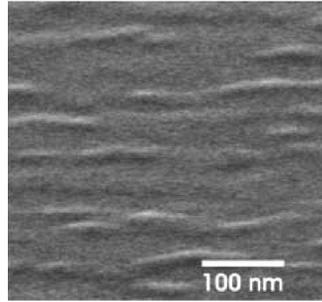


FIG. 6.13 – [41] Images MEB de boîtes quantiques d'InGaAs avant encapsulation. L'échantillon est incliné par rapport à la direction du faisceau d'électrons. Par conséquent, le grandissement dans la direction horizontale est environ 3 fois plus important que la direction verticale. Pour une concentration en indium de 30 %, des boîtes quantiques se forment, avec une longueur typique de 100 nm et une largeur d'environ 30 nm.

Les boîtes quantiques sont formées par déposition de 0.12 nm de $Ga_{0.88}In_{0.12}As$ et de 0.03 nm d' $InAs$. Après 30 de ces cycles, on obtient 4.5 nm d' $InGaAs$ contenant 30 % d' $InAs$. Ce mode de croissance favorise la formation de structures allongées de tailles typiques de 50 à 100 nm \times 30 nm. Les boîtes quantiques obtenues sont donc significativement plus grandes que les boîtes quantiques d' $InAs$ auto-assemblées fabriquées usuellement, dont la taille typique est de 20 \times 20 nm. Cette augmentation de taille est recherchée car elle induit une augmentation de l'extension de la fonction d'onde excitonique et donc une augmentation de la force d'oscillateur (voir section 3 du chapitre 1).

Ces boîtes quantiques sont insérées dans des micropiliers. Le diamètre des micropiliers maximisant le facteur Q/\sqrt{V} est de 1.5 μm . Le facteur de qualité correspondant est de 9000, et le volume effectif vaut $V = 0.3 \mu m^3$.

Observation du couplage fort La mise en résonance spectrale du mode de cavité et de l'émetteur repose toujours sur les différentes dépendances avec la température des énergies d'émission du mode et de l'exciton. La figure 6.14 montre l'anticroisement entre 5 K et 30 K entre l'exciton et le mode du micropilier, résonants à 1323.4 meV. Les énergies d'émission sont reportées sur la figure 6.14b. L'anticroisement est caractérisé par un dédoublement de Rabi de 140 μeV . De ce dédoublement de Rabi est déduit une force d'oscillateur excitonique minimale $f = 50$. La largeur de raie (figure 6.14c) et l'intensité d'émission (figure 6.14d) des états-couplés sont également étudiées en fonction de la température. On observe un échange des largeurs de raie et des intensités d'émission, du fait du couplage : loin de la résonance, l'état majoritairement photonique a une intensité environ 2.5 fois plus grande que l'état majoritairement excitonique et une largeur de raie de 200 μeV . La largeur de la transition excitonique est d'environ 80 μeV . La raie la plus intense et la plus large est donc la raie basse énergie à basse température et la raie haute énergie à haute

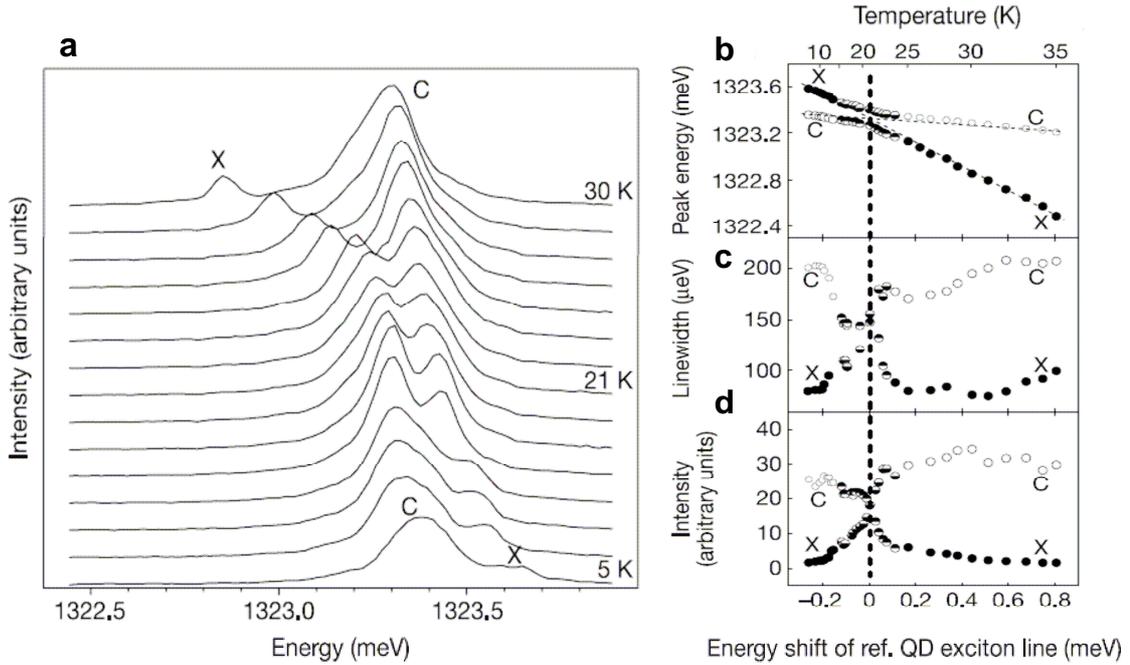


FIG. 6.14 – [41]. a-Dépendance en température des spectres de PL pour un micro-pilier de diamètre $1.5 \mu\text{m}$ ($Q = 7350$). L'anticroisement observé est la signature du régime de couplage fort entre l'exciton et le photon du mode de cavité. b-Anticroisement de l'exciton (X) et du mode de cavité (C). c-Evolution des largeurs de raies en fonction du désaccord. d-Evolution des intensités d'émission intégrées en fonction du désaccord, calculées à partir d'un ajustement lorentzien.

température. En s'approchant de la résonance, les intensités et largeurs de raies s'égalisent. A la résonance, les états couplés ont une largeur de $140 \mu\text{eV}$ et une intensité quasiment identique.

6.3.3 Nanotige de CdSe couplée à une microsphère de polystyrène

Description du système Le couplage fort exciton-photon a également été rapporté récemment dans un système formé d'un nanocristal semi-conducteur de sélénure de cadmium (CdSe) couplé à un mode de microsphère diélectrique [162] dans un groupe germano-israélo-bielarusse constitué de N. Le Thomas, U. Woggon, O. Schops, M. Kazes, U. Banin et M. V. Artemyev.

Les cavités sont des microsphères commerciales de polystyrène. Le diamètre optimal de ces microsphères pour le couplage fort est de $6 \mu\text{m}$, ce qui correspond à un volume effectif de $8 \mu\text{m}^3$. Les modes de galerie des microsphères sont caractérisés par leur polarisation TE ou TM, et les nombres angulaire l , radial l et azimuthal m . Du fait de leur symétrie sphérique, un mode (l,n) est dégénéré $(2l+1)$ fois. Cette dégénérescence correspond aux $2l + 1$ valeurs possibles de m . En appliquant une légère déformation aux sphères, la dégénérescence peut être levée, de sorte à coupler l'émetteur avec un mode non-dégénéré. La figure 6.15 montre le spectre résolu spatialement et spectralement du mode $TE_{41,1}$ d'une microsphère de $6 \mu\text{m}$ de diamètre. Les largeurs de raie pour les différentes valeurs de m varient de 20 à $714 \mu\text{eV}$.

L'émetteur est un nanocristal de CdSe très allongé (une nanotige), de rayon $R = 2.5 \text{ nm}$ et de 25 nm de longueur. Le temps de vie radiatif de ces nanotiges est d'environ 1 ns , soit une force d'oscillateur d'environ 5. Le spectre d'une nanotige unique et son évolution au cours du temps sont

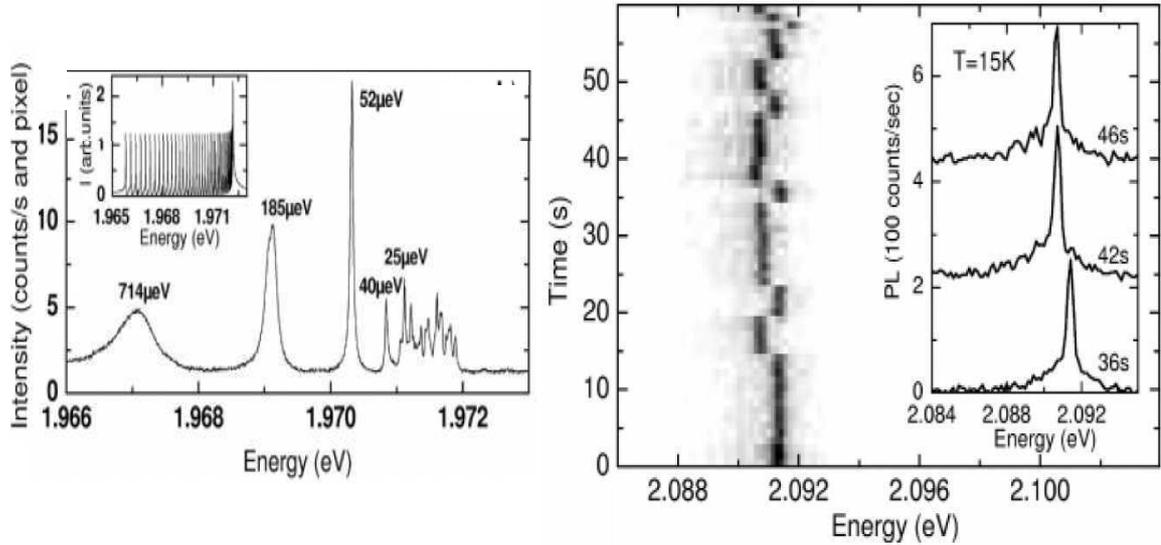


FIG. 6.15 – [162] A gauche : structure fine du mode montrant la levée de dégénérescence pour le mode $l = 41$. Insert : spectre théorique. A droite : Intensité résolue spectralement en fonction du temps (échelle linéaire de gris) à 15 K avec un temps d'acquisition d'1s. L'insert montre des spectres à différents instants, avec un saut spectral de $700 \mu\text{eV}$.

reportés sur la figure 6.15. Comme on peut le voir sur cette figure, l'énergie d'émission est constante sur un intervalle minimal de 4s. Au-delà, les fluctuations de charge de l'environnement engendrent des sauts de l'énergie d'émission allant jusqu'à $700 \mu\text{eV}$. Ces sauts sont donc plus importants que la largeur de raie du mode de cavité. L'idée des auteurs est alors d'utiliser cette diffusion spectrale comme "outil naturel" pour accorder l'émetteur et le mode.

Observation du couplage fort La partie gauche de la figure 6.16 montre des spectres pris à 4 différents instants, soit à 4 désaccords différents. Sur la partie droite de la figure, les spectres mesurés à différents instants ont été ordonnés en fonction du désaccord. Le mode en l'absence de nanotige est représenté au bas de la figure. Sa largeur est de $26 \mu\text{eV}$, ce qui correspond à un facteur de qualité $Q = 80000$. En présence des nanotiges, ce facteur de qualité est réduit par l'absorption des nanotiges; la largeur de raie du mode loin de la résonance vaut $65 \mu\text{eV}$ soit un facteur de qualité $Q = 35000$. La largeur de raie de l'émetteur est d'environ $20 \mu\text{eV}$. On observe alors un anti-croisement caractérisé par un dédoublement de Rabi de $40 \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie d'environ $40 \mu\text{eV}$, correspondant à la moyenne des largeurs de raies des états découplés.

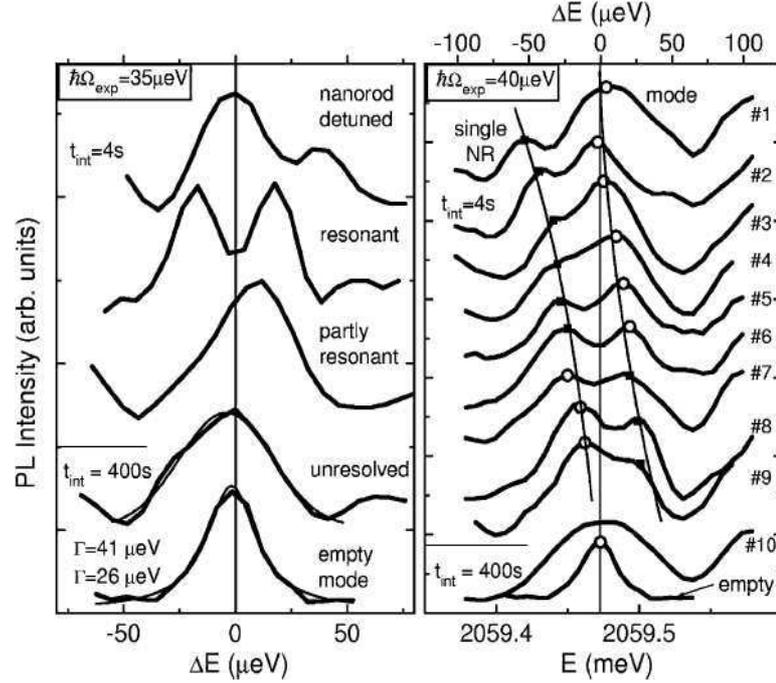


FIG. 6.16 – [162] A gauche : exemples de spectres pour différents désaccords observés pendant l’acquisition. En bas : spectre de référence de la sphère sans nanotige. A droite : spectres ordonnés en fonction du désaccord. On observe un croisement évité autour de l’énergie de référence de la cavité sans nanotige (en bas).

6.3.4 Discussion

Le tableau suivant synthétise les paramètres des différents systèmes 0D semi-conducteurs dans lesquels le régime de couplage fort a été observé. Pour chaque système, nous reportons les paramètres-clés Q , f , V et le produit $Q\sqrt{\frac{f}{V}}$. Nous indiquons également le dédoublement de Rabi $\hbar\Omega_R$ et les largeurs de raies du doublet à la résonance $\hbar\gamma$, en vue de calculer le rapport Ω_R/γ . En effet, ce rapport constitue une figure de mérite du couplage fort, puisqu’il est une indication, du point de vue temporel, du nombre d’oscillations bien définies effectuées par le système avant perte de sa cohérence.

Cavité	Cristal photonique	μ -pilier	μ -disque	μ -sphère
Q	8800	7350	10000	35000
$V(\mu m^3)$	0.04	0.3	0.07	8
Emetteur	BQ InAs	BQ InGaAs	BQ GaAs	Nanotige CdSe
f	8	50	100	5
$Q\sqrt{\frac{f}{V}} (\mu m^{-\frac{3}{2}})$	$125 \cdot 10^3$	$95 \cdot 10^3$	$380 \cdot 10^3$	$28 \cdot 10^3$
$\hbar\Omega_R (\mu eV)$	170	140	410	40
$\hbar\gamma (\mu eV)$	130	140	200	40
Ω_R/γ	1.3	1	2	1
Référence	[160]	[41]	[46]	[162]

Ce tableau met en évidence les différentes stratégies d’obtention du couplage fort :

- Tout d’abord, il est intéressant de remarquer que les facteurs de qualité des 3 cavités semi-conductrices contenant des boîtes quantiques sont du même ordre de grandeur ($Q \simeq 10^4$). La différence entre ces 3 systèmes repose donc sur les différentes valeurs de forces d’oscillateur f et de volumes effectifs V .
- L’observation du couplage fort avec les boîtes quantiques d’InAs en cristaux photoniques repose sur le très fort confinement du champ électromagnétique obtenu dans les cristaux photoniques ($V = 0.04 \mu\text{m}^3$), ce qui permet de compenser une force d’oscillateur faible ($f = 10$). Le dédoublement de Rabi obtenu est de $170 \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie de $130 \mu\text{eV}$. Le rapport Ω_R/γ vaut donc 1.3.
- L’observation du couplage fort avec des boîtes quantiques naturelles d’InGaAs en micro-piliers repose au contraire sur les grandes forces d’oscillateur excitoniques ($f = 50$), ce qui compense un relativement faible confinement du champ électromagnétique ($V = 0.3 \mu\text{m}^3$). Le dédoublement de Rabi est de $140 \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie de $140 \mu\text{eV}$. Le rapport Ω_R/γ vaut donc 1.
- Le système boîtes quantiques naturelles de GaAs en microdisque tire parti à la fois des grandes forces d’oscillateur ($f = 100$) et du confinement important du champ électromagnétique dans les microdisques ($V = 0.07 \mu\text{m}^3$). Le dédoublement de Rabi observé est alors de $410 \mu\text{eV}$ pour des largeurs de raie de $200 \mu\text{eV}$, d’où une figure de mérite record $\Omega_R/\gamma = 2$ pour les systèmes 0D semi-conducteurs. Notons toutefois que cette valeur est encore trop faible pour envisager des expériences de manipulation cohérente.
- L’observation du couplage fort dans les nanotiges de CdSe couplées à une sphère de polystyrène repose sur les faibles largeurs de raies. En effet, le facteur de qualité est plus élevé que dans les systèmes décrits précédemment ($Q = 35000$), ce qui correspond à une largeur de raie de $60 \mu\text{eV}$. La raie d’émission de la nanotige est également très fine ($20 \mu\text{eV}$). Ces largeurs de raies permettent d’observer le couplage fort avec un dédoublement de Rabi de seulement $40 \mu\text{eV}$, la force d’oscillateur et le confinement du champ étant relativement faible ($f = 5$ et $V = 8 \mu\text{m}^3$). Le rapport Ω_R/γ vaut 1 dans ce système.

Synthèse : Un bilan du système boîtes quantiques de GaAs en microdisques en termes de force d’oscillateur, facteur de qualité, volume effectif et largeurs de raie nous a permis de calculer dans la partie 6.1 l’ordre de grandeur du dédoublement de Rabi attendu. Dans cette partie, nous avons également recensé toutes les conditions d’observation du régime de couplage fort : accord en polarisation, accord spatial et accord spectral.

Dans la partie 6.2, nous avons exposé la première démonstration expérimentale du régime de couplage fort exciton-photon dans le système boîtes quantiques de GaAs en microdisque. Nous avons observé, dans des expériences de micro-photoluminescence, un anti-croisement caractérisé par un dédoublement de Rabi à la résonance de $410 \mu\text{eV}$, avec des largeurs de raie de $200 \mu\text{eV}$.

Dans la partie 6.3, nous avons discuté des différentes observations du couplage fort dans les systèmes semi-conducteurs 0D. Nous avons établi une figure de mérite du couplage fort, qui est le rapport du dédoublement de Rabi à la résonance sur les largeurs spectrales des états habillés. Ce rapport est de l’ordre de l’unité dans les différents systèmes, avec un record de 2 pour les boîtes quantiques de GaAs en microdisque.

Chapitre 7

Bilan et Perspectives

7.1 Bilan

Dans ce travail de thèse, nous avons participé au développement de l'électrodynamique quantique en cavité dans les systèmes entièrement semi-conducteurs et avons ouvert la voie aux expériences en régime de couplage fort.

Nous avons choisi d'étudier les boîtes quantiques de GaAs insérées dans des microdisques pour observer le régime de couplage fort. Après avoir identifié le système semi-conducteur candidat au couplage fort, nous nous sommes attachés à caractériser les propriétés de ce système : nous avons étudié les propriétés radiatives de l'émetteur à travers les expériences de micro-photoluminescence résolues en temps. Nous avons alors montré que les boîtes quantiques naturelles de GaAs, en particulier les plus grandes, possèdent de très grandes forces d'oscillateur excitoniques. Nous nous sommes ensuite intéressés à leur largeurs spectrales au cours d'une étude des processus d'interaction avec l'environnement : l'interaction avec le réseau cristallin, d'une part, et l'interaction avec l'environnement coulombien, d'autre part. Concernant la cavité, nous avons d'abord travaillé à rendre la réalisation technologique des microdisques plus reproductible ; nous avons également montré qu'un nouveau type de cavité peut renforcer la robustesse des microdisques les plus petits. Enfin, l'ensemble de ces études a convergé vers la démonstration expérimentale du régime de couplage fort exciton-photon, prouvant par-là que la cohérence du système boîte quantique en microdisque est assez robuste pour permettre la production d'états purement quantiques, mélanges intriqués de lumière et de matière.

7.2 Du hasard au déterminisme

Dans les premières démonstrations du couplage fort dans les systèmes semi-conducteurs 0D, chaque groupe a étudié de nombreuses cavités et compté sur le hasard pour réunir toutes les conditions d'obtention du couplage fort. Le hasard intervient principalement dans la localisation de la boîte quantique par rapport au maximum d'intensité du champ électromagnétique et dans l'accord spectral émetteur-mode de cavité, la température ne servant qu'à un accord fin sur une plage de moins d'un meV. Le couplage fort ayant été démontré, l'enjeu essentiel est dorénavant d'obtenir ce régime de façon contrôlée. Nous allons présentons les principaux travaux engagés dans cette voie.

7.2.1 Contrôle de l'accord spatial

Le contrôle de la position de la boîte quantique par rapport au ventre d'un mode du champ électromagnétique est d'autant plus nécessaire que le confinement du champ électromagnétique est grand. En effet, plus le volume effectif du mode est petit, plus la probabilité d'accord spatial, s'il est laissé au hasard, est petite. Les efforts du contrôle du positionnement de la boîte quantique dans un ventre du champ électromagnétique se sont donc assez naturellement développés dans les cristaux photoniques. La référence à ce jour est le travail de Badolato *et al.* [163, 167], visant à positionner les motifs d'une membrane photonique après avoir repéré les coordonnées d'une boîte quantique. L'énergie du mode est ensuite accordée par la technologie, comme nous le verrons au prochain paragraphe.

La cavité est une membrane photonique de 175 nm d'épaisseur, formée d'un réseau carré de trous tous identiques, avec un trou manquant. Le mode qui s'établit au niveau du défaut de périodicité est un mode de galerie. Son intensité est donc maximale à la périphérie des trous. Afin d'éviter l'élargissement engendré par la proximité d'une surface à l'air libre à moins de 40 nm [122], l'objectif visé est de placer la boîte quantique non pas au maximum du champ mais aux $2/3$ du maximum, pour l'éloigner des trous d'environ 70 nm .

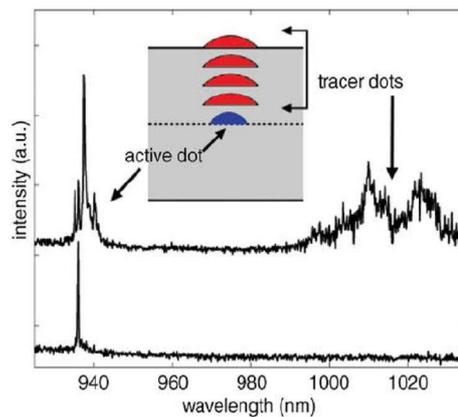


FIG. 7.1 – [163] Schéma de l'empilement des boîtes quantiques dans une membrane photonique. La transition fondamentale des boîtes quantiques au centre de la membrane se situe vers $\lambda = 940\text{ nm}$. La transition des boîtes quantiques servant de traceurs pour la visualisation est à plus basse énergie, vers $\lambda = 1020\text{ nm}$.

Dans un premier temps, il s'agit de repérer la boîte quantique. La solution trouvée par Badolato *et al.* consiste à placer un "traceur" à la surface, à l'aplomb de chacune des boîtes quantiques située au centre du guide. Ce traceur est formé pendant l'épitaxie, par empilement de boîtes quantiques au-dessus de celles qui se trouvent au milieu de la membrane (voir la figure 7.1). En effet, il est bien connu que le champ de contrainte créé par la première couche de boîtes quantiques favorise la nucléation des couches suivantes de boîtes quantiques au même endroit. Afin que ces traceurs n'aient pas de recouvrement spectral avec les boîtes quantiques étudiées, les conditions de croissance visent à les désaccorder de 150 nm vers les basses énergies. La dernière couche de boîtes quantiques n'est pas recouverte de GaAs; elle peut être visualisée en microscopie électronique à balayage, de sorte à effectuer la lithographie électronique des motifs du cristal par rapport aux coordonnées des boîtes quantiques repérées. Les auteurs estiment l'erreur de positionnement inférieure à 25 nm , ce qui est suffisant assurer le recouvrement spatial de l'exciton avec une région

ou le champ électromagnétique est fort. La figure 7.2 montre une boîte quantique positionnée activement dans une membrane photonique. L'objectif visé et atteint avec une erreur négligeable, était d'avoir la boîte quantique à mi-distance entre le centre et le trou au bord du défaut de périodicité. Cette technique est donc efficace. De plus, elle est reproductible. Elle est transposable à un autre

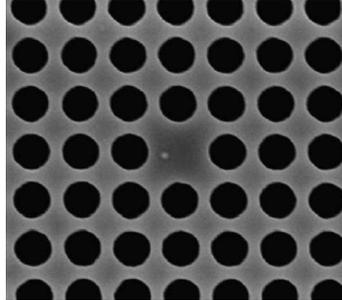


FIG. 7.2 – [163] Image obtenue au MEB montrant l'efficacité du procédé de contrôle spatial. L'objectif visé était de placer la boîte quantique à mi-chemin entre le centre du défaut et le premier trou du cristal photonique à gauche du défaut, pour être dans une région de forte intensité du champ électromagnétique. L'erreur de positionnement est négligeable.

type de cavité, par exemple les microdisques mais est spécifique à l'emploi de boîtes quantiques auto-assemblées.

Le facteur de qualité mesuré pour le mode est de 8500. Son volume effectif est de $0.7(\frac{\lambda}{n})^3$. Des études optiques sont actuellement en cours sur le couplage exciton-photon. L'effet Purcell a été mis en évidence dans ce système [166]. Cette technique devrait conduire à l'observation du couplage fort. En effet, avec une force d'oscillateur $f = 10$, le facteur $Q\sqrt{\frac{f}{V}}$ (pour $Q = 8500$) est identique à celui de la boîte quantique de GaAs en microdisque avec laquelle nous avons démontré le couplage fort. Ces travaux ouvrent donc la voie à l'observation déterministe du couplage fort, en plaçant activement la boîte quantique au ventre du champ électro-magnétique. Nous allons voir que le contrôle de l'accord spectral constitue une seconde avancée dans cette voie.

7.2.2 Contrôle de l'accord spectral

De façon générale, pour les micropiliers, les microdisques ou les cavités à cristaux photoniques, il est difficile de contrôler précisément l'énergie des modes de cavité, car leur taille ne peut être contrôlée avec une précision infinie en lithographie ou en gravure. Pour cette raison, on fabrique habituellement sur un même échantillon des cavités avec des tailles différentes pour obtenir une distribution statistique des énergies des modes de cavité.

Une première technique de contrôle spectral fin est décrite dans la thèse de Thiagarajan [123], en vue d'obtenir l'effet laser à une longueur d'onde précise. Les cavités étudiées sont des microdisques sur saphir, dont le principe est identique aux microdisques sur AlOx. Le saphir possède un indice proche de celui de l'air ($n=1.7$) et une conductivité thermique 2000 fois plus grande, ce qui est très intéressant pour les lasers. L'idée pour accorder le mode laser est de déposer une couche de SiO_2 sur le microdisque. Le microdisque peut alors être vu verticalement comme un guide d'onde à 4 couches : saphir, semiconducteur, SiO_2 et air. L'indice effectif du microdisque et donc l'énergie du mode de galerie dépendent alors de l'épaisseur de SiO_2 déposée. Le dépôt est

répété jusqu'à atteindre la longueur d'onde souhaitée. Dans un microdisque de $1.5 \mu\text{m}$, un mode émettant à $\lambda = 1526.3 \text{ nm}$ émet après dépôt de 25 nm de SiO_2 à $\lambda = 1529.8 \text{ nm}$. Corrélativement, le seuil laser est augmenté de 15 %, du fait notamment que ce dépôt renforce l'asymétrie verticale et déplace verticalement le maximum du champ. Un décalage de 8 nm est obtenue par un dépôt de 80 nm de SiO_2 . Des calculs effectués dans cette même thèse montrent qu'un décalage de 50 nm pourrait être obtenu en utilisant de l'InP plutôt que du SiO_2 . Le matériau choisi doit avoir un indice aussi faible que possible et être transparent à l'énergie d'émission des boîtes quantiques.

Une autre technique est utilisée par Badolato *et al.* pour accorder l'énergie du mode de la cavité positionnée comme nous l'avons vu dans le premier paragraphe [167]. Dans un cristal photo-

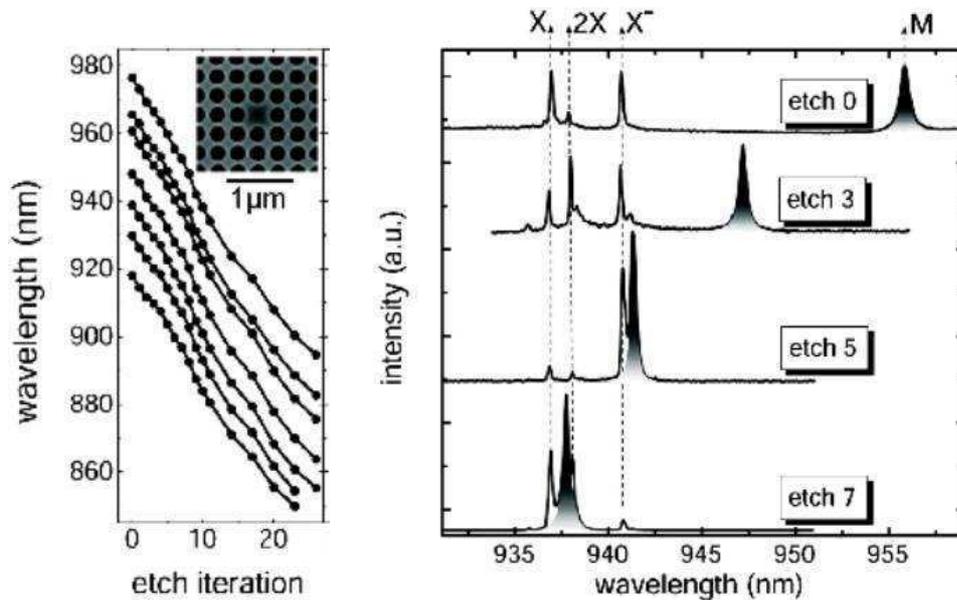


FIG. 7.3 – [167] A gauche : longueurs d'onde de résonance en fonction des itérations de gravure. A droite : spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique positionnée dans la membrane photonique, pour différents nombres de pas de gravure. Après 5 cycles de gravure, le mode (M) est quasi-résonant avec l'exciton chargé (X^-), après 7 cycles avec le biexciton ($2X$).

nique, l'énergie du mode dépend du diamètre des trous. L'idée de Badolato *et al.* est d'accorder très finement cette énergie en augmentant progressivement la taille des trous par gravures chimiques successives dans une solution diluée d'acide citrique [167]. Chaque étape de gravure augmente le diamètre des trous d'environ 5.65 nm ce qui permet de répéter l'opération des dizaines de fois avant de dégrader le facteur de qualité, du fait de la réduction de l'épaisseur de la membrane. Un accord spectral de 80 nm a pu ainsi être obtenu par pas de $2\text{-}3 \text{ nm}$, comme le montre la figure 7.3. Cette figure montre également des spectres de photoluminescence, et l'accord progressif obtenu après un nombre croissant de cycles de gravure. Cette méthode peut être envisagée pour placer, par la technologie, le mode en quasi-résonance avec une transition de la boîte quantique, un accord fin pouvant ensuite être obtenu par une variation de température limitée.

La transposition de ce procédé d'accord spectral mérite d'être tentée sur les microdisques. En effet, l'énergie du mode de galerie d'un microdisque dépend de façon très sensible du diamètre du disque. Pour un disque de $2 \mu\text{m}$ de diamètre, une variation de diamètre d' 1 nm entraîne une

variation de longueur d'onde du mode fondamental de 0.1 % soit 0.75 nm ou 1.6 meV. Un accord spectral fin pourrait être ainsi obtenu sans dégrader la qualité des flancs du microdisque.

7.3 Perspectives d'expériences d'EDQC en régime de couplage fort avec des boîtes quantiques

Dans cette dernière partie, nous exposons brièvement quelques idées d'expériences inspirées de la physique atomique [168], envisageables avec des boîtes quantiques en cavité.

7.3.1 Statistique d'émission des états du doublet de Rabi

Considérons le schéma des niveaux de la figure 7.4 représentant les états exciton-photon couplés $|\Psi_{\pm 1}\rangle$ et l'état fondamental du système, noté $|g, 0\rangle$. On note $\hbar\omega$ l'énergie de la résonance et $\hbar\Omega_1$ le dédoublement de Rabi. Rappelons qu'à l'intérieur d'une multiplicité M_n , il n'existe pas de dipole entre les états $|\Psi_{\pm n}\rangle$, donc pas de transition possible.

Dans une expérience sous excitation impulsionnelle non-résonante, supposons que l'état initial, par exemple $|\Psi_{+1}\rangle$, se désexcite en émettant spontanément un photon à l'énergie $\hbar\omega + \frac{\hbar\Omega_1}{2}$. Il faut attendre la prochaine impulsion laser pour pouvoir observer une transition de $|\Psi_{-1}\rangle$ vers $|g, 0\rangle$, à l'énergie $\hbar\omega - \frac{\hbar\Omega_1}{2}$. La probabilité conditionnelle de détecter un photon, avant l'impulsion suivante, à l'énergie $\hbar\omega - \frac{\hbar\Omega_1}{2}$ si un photon est détecté à $\hbar\omega + \frac{\hbar\Omega_1}{2}$ (et inversement) doit être nulle. Une anti-corrélation entre les 2 états $|\Psi_{\pm 1}\rangle$ est donc attendue dans une expérience de statistique d'émission des états couplés.

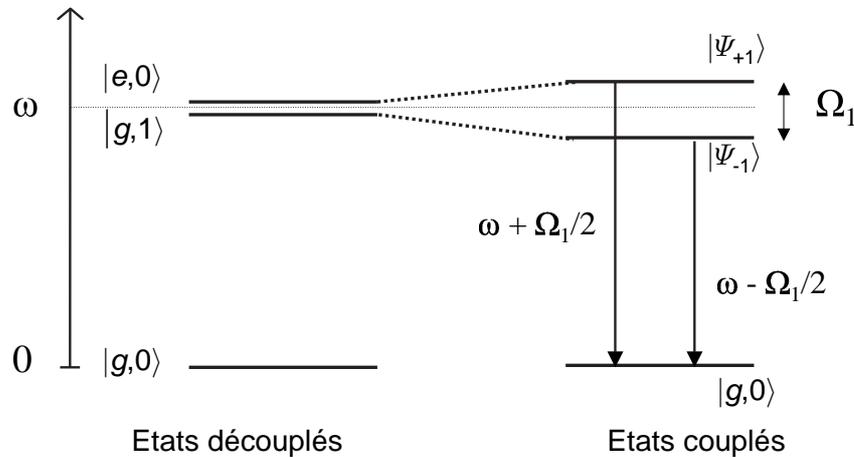


FIG. 7.4 – Diagramme d'énergie du système découplé (à gauche) et couplé (à droite). L'état $|g, 0\rangle$ désigne l'état fondamental du système.

7.3.2 Emission spontanée du biexciton : doublet d'Autler-Townes

Introduisons maintenant le biexciton dans le diagramme d'énergie. Du fait de l'interaction coulombienne entre les 2 excitons de la boîte quantique, le biexciton n'est pas résonant avec le mode de cavité. Son énergie est égale à $\hbar\omega_{xx} = 2\hbar\omega - \hbar\omega_l$, où $\hbar\omega_l$ est l'énergie de liaison du biexciton. Cette énergie est typiquement de 2–3 meV, c'est-à-dire très supérieure aux dédoublements de Rabi observés jusqu'alors dans les boîtes quantiques. Supposons qu'à $t = 0$ le système soit dans l'état

biexcitonique $|XX\rangle$, créé par exemple par absorption à 2 photons. La cascade radiative peut avoir lieu selon 2 chemins schématisés sur la figure 7.5 :

- L'état $|XX\rangle$ se désexcite vers l'état $|\Psi_{+1}\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar(\omega - \omega_l - \frac{\Omega_1}{2})$, puis de l'état $|\Psi_{+1}\rangle$ vers le vide en émettant un photon à l'énergie $\hbar(\omega + \frac{\Omega_1}{2})$
- L'état $|XX\rangle$ se désexcite vers l'état $|\Psi_{-1}\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar(\omega - \omega_l + \frac{\Omega_1}{2})$, puis de l'état $|\Psi_{-1}\rangle$ vers le vide en émettant un photon à l'énergie $\hbar(\omega - \frac{\Omega_1}{2})$

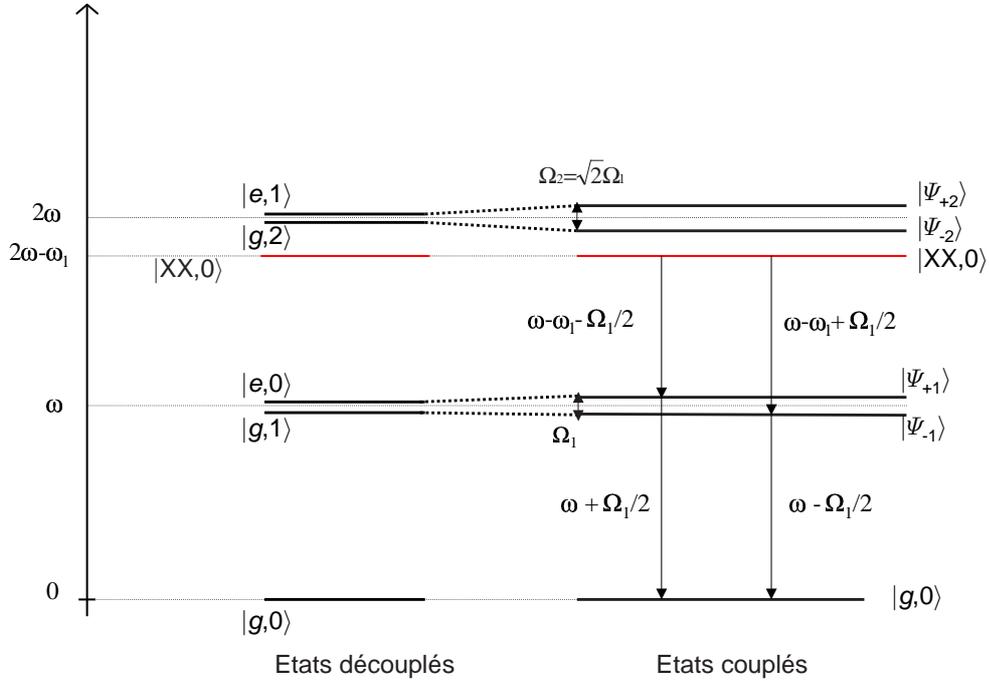


FIG. 7.5 – Diagramme d'énergie des 2 premières multiplicités du système découplé (à gauche) et couplé (à droite) et niveau d'énergie du biexciton (non-couplé). Les 2 chemins de désexcitation du biexciton sont indiqués par des flèches, avec l'énergie des photons émis spontanément en regard.

On s'attend donc à observer sur le spectre du biexciton une structure de doublet, analogue au doublet Autler-Townes [171], aux énergies $\hbar\omega_{xx} \pm \hbar\omega \frac{\hbar\Omega}{2} = \hbar\omega + \hbar\omega_l \pm \frac{\hbar\Omega}{2}$.

On attend également des corrélations temporelles entre les photons émis aux 2 énergies différentes $\hbar\omega + \hbar\omega_l + \frac{\hbar\Omega}{2}$ et $\hbar\omega + \hbar\omega_l - \frac{\hbar\Omega}{2}$, signature des cascades radiatives $|XX\rangle-|\Psi_{+1}\rangle-|g,0\rangle$ et $|XX\rangle-|\Psi_{-1}\rangle-|g,0\rangle$. Des anti-corrélations sont au contraire attendues entre les photons à l'énergie $\hbar(\omega - \omega_l - \frac{\Omega_1}{2})$ et les photons à l'énergie $\hbar(\omega - \omega_l + \frac{\Omega_1}{2})$ et $\hbar(\omega - \frac{\Omega_1}{2})$ ainsi qu'entre les photons d'énergie $\hbar(\omega - \omega_l + \frac{\Omega_1}{2})$ et les photons d'énergie $\hbar(\omega - \omega_l - \frac{\Omega_1}{2})$ et $\hbar(\omega + \frac{\Omega_1}{2})$.

7.3.3 Cascade radiative entre niveaux habillés.

La cascade radiative entre niveaux habillés a été étudiée sur les atomes en 1980 par A. Aspect *et al.* [170]. Dans un premier temps, nous décrivons le principe sur lequel repose cette expérience de physique atomique ; nous verrons ensuite dans quelle mesure elle peut être envisagée avec des boîtes quantiques en microcavité. Considérons la figure 7.6 représentant les états habillés dans les

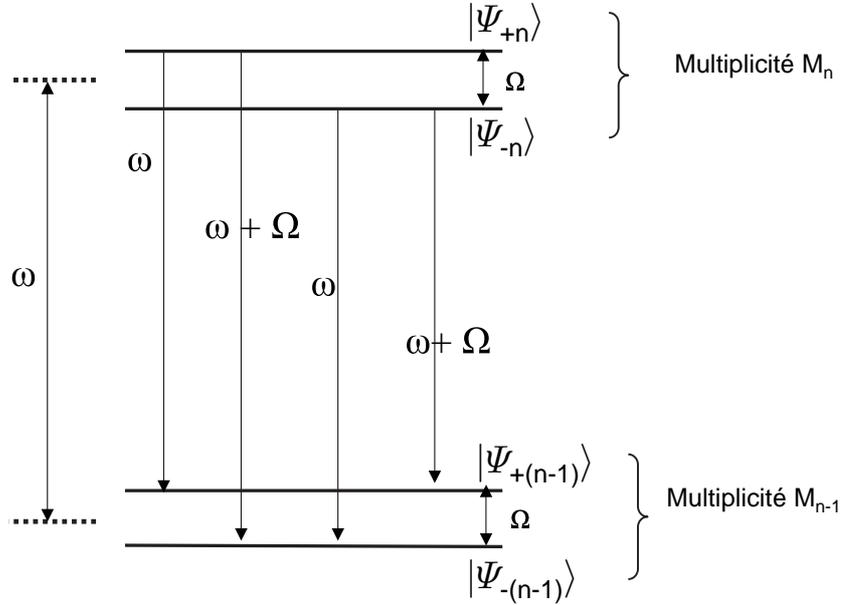


FIG. 7.6 – Diagramme d'énergie des multiplicités M_n et M_{n-1} du système couplé.

multiplicités M_n et M_{n-1} . Comme n est grand dans l'expérience considérée, le dédoublement de Rabi des multiplicités M_n et M_{n-1} est considéré identique (la différence entre \sqrt{n} et $\sqrt{n+1}$ est négligée). Nous notons Ω ce dédoublement de Rabi et ω la pulsation de résonance du système atome+cavité. Comme les transitions entre états d'une même multiplicité ne sont pas permises, l'émission spontanée peut avoir lieu entre :

- $|\Psi_{+n}\rangle$ et $|\Psi_{+(n-1)}\rangle$ à l'énergie $\hbar\omega$
- $|\Psi_{+n}\rangle$ et $|\Psi_{-(n-1)}\rangle$ à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\Omega$
- $|\Psi_{-n}\rangle$ et $|\Psi_{+(n-1)}\rangle$ à l'énergie $\hbar\omega$
- $|\Psi_{-n}\rangle$ et $|\Psi_{-(n-1)}\rangle$ à l'énergie $\hbar\omega - \hbar\Omega$

Le spectre observé a alors une structure de triplet [169], appelé triplet de Mollow, avec une raie centrale à l'énergie $\hbar\omega$ et des raies latérales à l'énergie $\hbar\omega \pm \hbar\Omega$.

Des mesures de statistique d'émission ont mis en évidence des corrélations temporelles entre photons de fluorescence filtrés en fréquence [169]. Pour le comprendre, considérons la figure 7.7. Le système initialement dans l'état $|\Psi_{+n}\rangle$, se désexcite par exemple vers $|\Psi_{-(n-1)}\rangle$ en émettant un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\Omega$, puis vers $|\Psi_{+(n-2)}\rangle$ par émission d'un photon d'énergie $\hbar\omega - \hbar\Omega$, puis vers $|\Psi_{-(n-3)}\rangle$ en émettant un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\Omega$.

Cette image permet de comprendre les corrélations temporelles entre photons émis dans les différentes raies du triplet : après émission d'un photon d'énergie $\hbar\omega + \hbar\Omega$ le système peut émettre un photon à $\hbar\omega$ ou un photon à $\hbar\omega - \hbar\Omega$. Plus généralement, après chaque émission de photon, il existe 2 voies de désexcitation. En revanche, entre 2 émissions de photons à $\hbar\omega + \hbar\Omega$, il doit

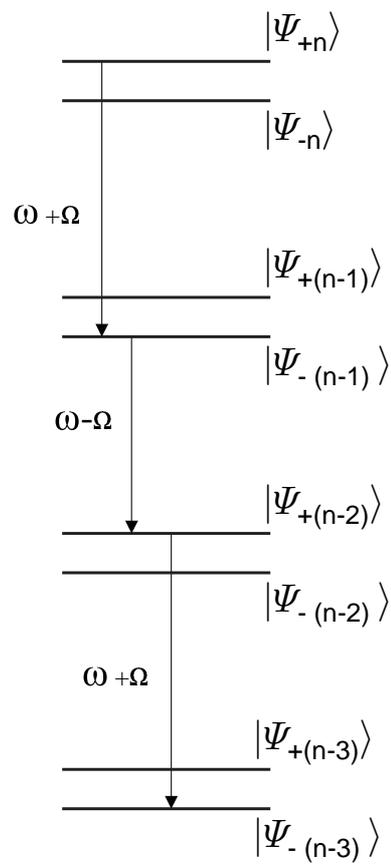


FIG. 7.7 – Cascade radiative dans la base des états-couplés dans les multiplicités de M_n à M_{n-3} .

nécessairement y avoir un photon à $\hbar\omega - \hbar\Omega$, comme le montre la figure 7.7. Les corrélations entre photons à $\hbar\omega + \hbar\Omega$ et $\hbar\omega - \hbar\Omega$ ont été observées entre les 2 raies latérales du triplet avec des atomes en cavité en 1980 [170].

Cascade radiative entre états habillés dans les boîtes quantiques en microcavité

La démonstration du couplage fort dans les systèmes semi-conducteurs repose sur l'observation d'un doublet dans l'émission spontanée de la transition fondamentale de la boîte quantique en résonance avec la cavité, contenant un photon dans le mode. L'expérience que nous venons de décrire suppose de peupler le mode avec un nombre de photons n (grand). Une étape préalable à l'observation de la cascade radiative entre états habillés des différentes multiplicités est donc de démontrer la possibilité d'injecter 2 photons (et plus) dans le mode de cavité.

L'expérience la plus simple de démonstration de la cascade radiative que nous envisageons se limite aux multiplicités M_1 et M_2 . Le diagramme énergétique pour ces multiplicités est représenté sur la figure 7.8. Supposons qu'à $t = 0$, le système soit dans l'un des états de la multiplicité M_2 , suite à une absorption à 2 photons, par exemple. Le biexciton est omis du diagramme, car les processus qui connectent les états de la multiplicité M_2 à l'état $|XX\rangle$ sont du deuxième ordre. L'émission spontanée du système initialement dans la multiplicité M_2 vers l'état fondamental du système comporte 4 chemins possibles :

- De $|\Psi_{+2}\rangle$ vers $|\Psi_{-(1)}\rangle$ en mettant un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\frac{\Omega_1+\Omega_2}{2}$ puis de $|\Psi_{-(1)}\rangle$ vers $|g, 0\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar\omega - \hbar\frac{\Omega_1}{2}$
- De $|\Psi_{+2}\rangle$ vers $|\Psi_{+(1)}\rangle$ en mettant un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\frac{\Omega_2-\Omega_1}{2}$ puis de $|\Psi_{+(1)}\rangle$ vers $|g, 0\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\frac{\Omega_1}{2}$
- De $|\Psi_{-2}\rangle$ vers $|\Psi_{-(1)}\rangle$ en mettant un photon à l'énergie $\hbar\omega - \hbar\frac{\Omega_2-\Omega_1}{2}$ puis de $|\Psi_{-(1)}\rangle$ vers $|g, 0\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar\omega - \hbar\frac{\Omega_1}{2}$
- De $|\Psi_{-2}\rangle$ vers $|\Psi_{+(1)}\rangle$ en mettant un photon à l'énergie $\hbar\omega - \hbar\frac{\Omega_1+\Omega_2}{2}$ puis de $|\Psi_{+(1)}\rangle$ vers $|g, 0\rangle$ par émission d'un photon à l'énergie $\hbar\omega + \hbar\frac{\Omega_1}{2}$

Des mesures de statistique d'émission devraient mettre en évidence ces 4 cascades radiatives.

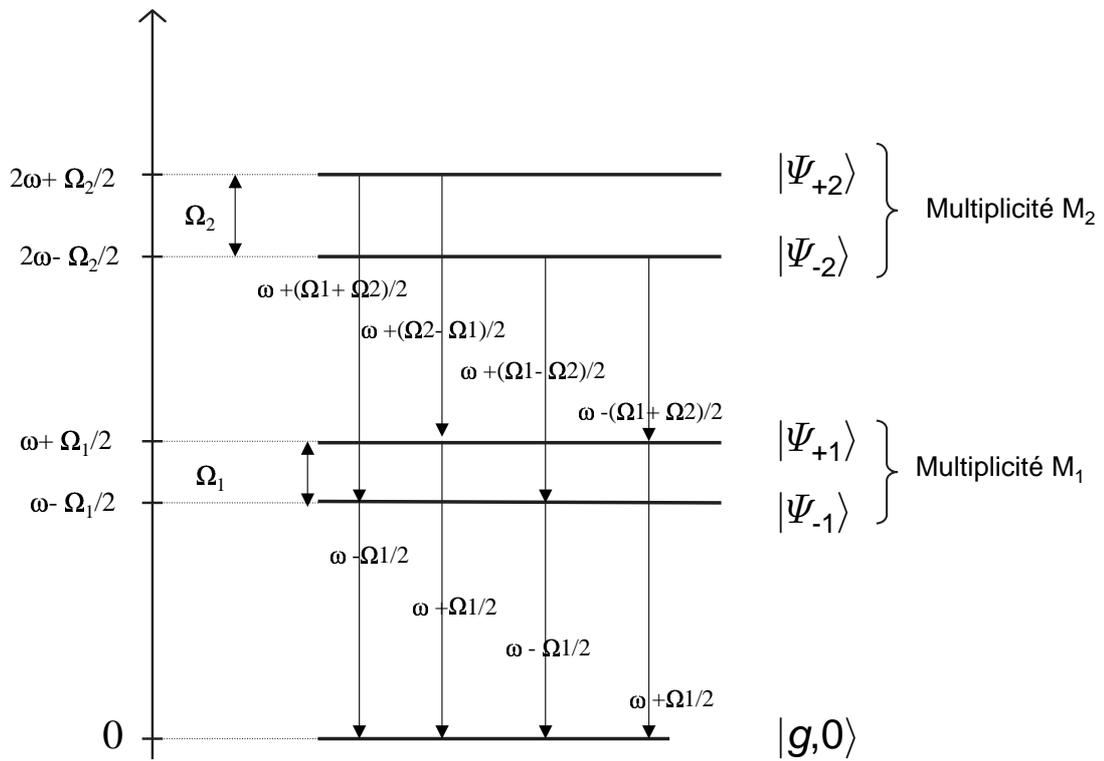


FIG. 7.8 – Diagramme d'énergie du système couplé limité aux multiplicité M_1 et M_2 . L'état $|g,0\rangle$ désigne l'état fondamental du système. Des flèches schématisent la désexcitation des états habillés par émission spontanée de photons à l'énergie indiquée.

7.3.4 Blocage de photons

Une expérience dite de blocage de photons, rapportée en 2005 dans les atomes, peut également être envisagée dans les boîtes quantiques. Le principe du blocage de photons repose sur le diagramme d'énergie suivant :

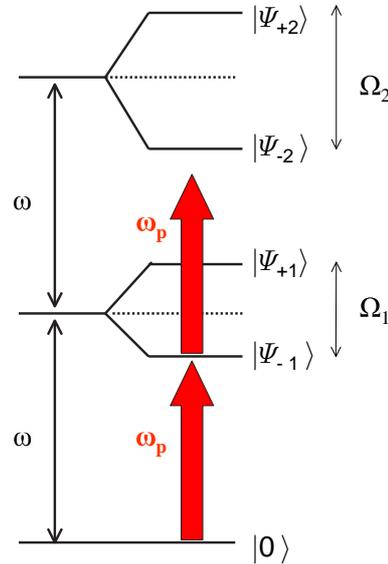


FIG. 7.9 – [172] Diagramme d'énergie sur lequel repose le blocage de photons.

Après absorption résonante d'un photon à l'énergie notée ω_p , le système devient transparent à cette énergie. L'absorption est "bloquée", d'où le terme de blocage de photons. En effet, l'absorption entre les états $|\Psi_{-1}\rangle$ et $|\Psi_{-2}\rangle$ nécessite l'absorption d'un photon à l'énergie $\hbar(\omega + \frac{\Omega_1 - \Omega_2}{2}) > \omega_p$. Cette expérience peut être envisagée dans les boîtes quantiques, à condition que la transition à 2 photons ω_p ne soit pas résonante avec le biexciton c'est-à-dire que le dédoublement de Rabi soit différent de l'énergie de liaison de l'exciton. Toutefois, elle est plus délicate à mettre en oeuvre que les expériences décrites précédemment dans lesquelles l'excitation était non-résonante. Ici, il s'agit en effet de sonder la transmission ou l'absorption du système à l'énergie de l'excitation.

Les pistes de travail esquissées dans cette dernière partie sont des réflexions tout-à-fait préliminaires aux suites de ce travail. Une réflexion est actuellement en cours au niveau international pour déterminer les effets d'EDQC envisageables avec les boîtes quantiques.

Annexe A

Dispositif de micro-photoluminescence

Cette annexe décrit l'expérience que nous avons utilisée pour l'étude optique des boîtes quantiques et des modes de galerie.

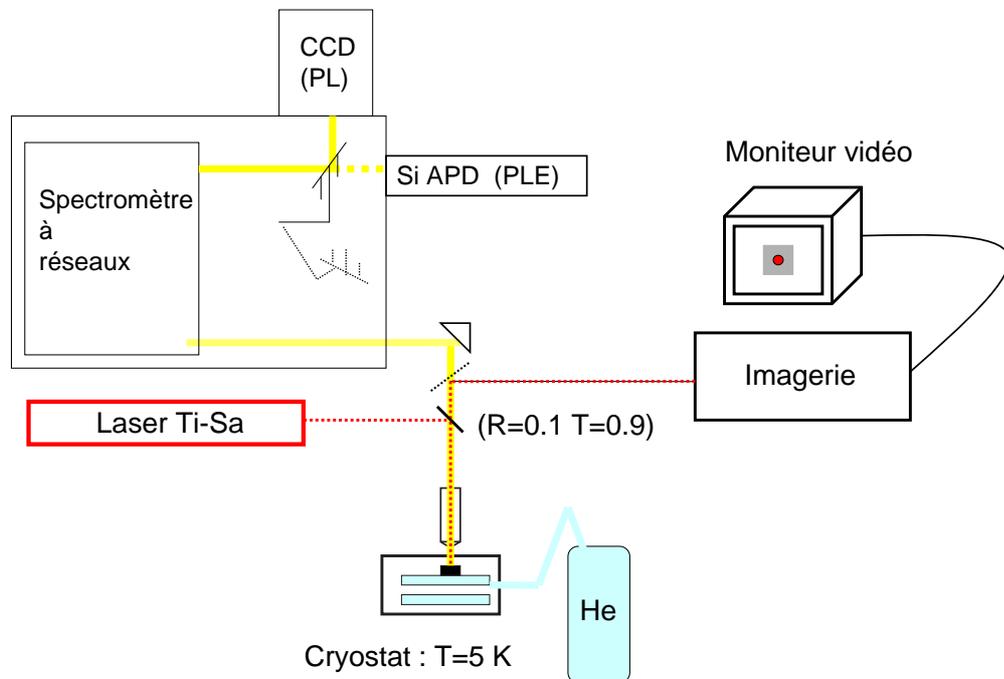


FIG. A.1 – Dispositif expérimental de micro-photoluminescence.

Le principe de la photoluminescence est de fournir de l'énergie sous forme lumineuse et de collecter la réponse lumineuse à cette excitation. Un objectif de microscope permet d'obtenir la résolution spatiale pour l'étude d'un objet unique : on parle donc de micro-photoluminescence. Le montage est représenté sur la figure A.1. L'excitation est fournie par un laser titane-saphir. Le laser exciteur est accordable entre 690 nm et 850 nm . Une lame ($R=0.1$ $T=0.9$) permet d'injecter 10 % de la puissance du laser dans un objectif de microscope, puis de le focaliser sur l'échantillon. L'objectif de microscope utilisé a une ouverture numérique de 0.5. Le diamètre du spot obtenu est d'environ $3\text{ }\mu\text{m}$. L'échantillon est placé dans un cryostat à doigt froid fonctionnant à l'hélium liquide. Une résistance chauffante permet de varier la température entre 4 et 300K. Le cryostat peut être déplacé grossièrement avec des moteurs pas à pas ou plus finement avec des moteurs piézo-électriques, avec une précision de quelques nanomètres. Un système d'imagerie permet d'éclairer et

de visualiser sur une caméra CCD l'échantillon et le spot laser, afin de se repérer sur l'échantillon. La visualisation est obtenue en intercalant une lame amovible sur le trajet optique. La collection du signal d'effectue par le même objectif de microscope. Elle est réfléchié par le miroir puis transmise à 90 % par la même lame ($R=0.1$ $T=0.9$). Elle est ensuite focalisée sur la fente d'entrée d'un double-spectromètre de focale $f = 1 m$, comprenant 2 réseaux de 1200 traits/mm. La résolution maximale est de $30 \mu eV$. En sortie du spectromètre, le signal dispersé spectralement peut être détecté par 2 détecteurs, le passage de l'un à l'autre se faisant par basculement d'un miroir. Une photodiode à avalanche de silicium couplée à un module de comptage de photons permet une détection monocanale. Ce détecteur est surtout utilisé pour les expériences d'excitation de la photoluminescence : la détection étant fixée à la longueur d'onde choisie, on mesure l'intensité du signal de photoluminescence en fonction de la longueur d'onde du laser d'excitation. L'autre détecteur est une barrette CCD silicium refroidie à l'azote qui permet la détection sur une plage spectrale de $20 nm$.

Annexe B

Dispositif de corrélations de photons

Cette annexe décrit l'expérience de corrélation de photons dite de Hanbury Brown et Twiss.

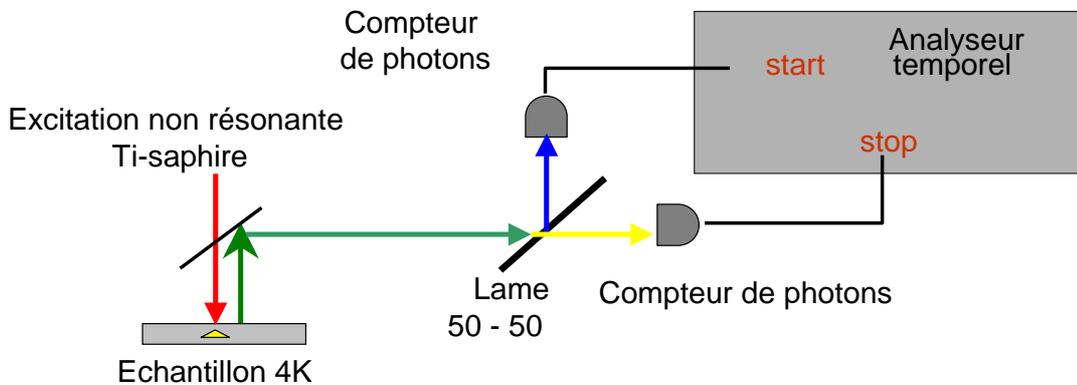


FIG. B.1 – Dispositif expérimental de corrélations de photons.

Le montage, schématisé sur la figure B.1, est associé au dispositif de μ -PL décrit dans l'annexe A. L'excitation est fournie par un laser titane-saphir pulsé. Le signal de photoluminescence est envoyé sur un cube séparateur 50/50. Chacun des faisceaux est focalisé sur la fente d'entrée d'un spectromètre de focale $f = 0.32 m$. Le signal dispersé spectralement est focalisé sur la fenêtre de détection d'une photodiode à avalanche silicium. Elles ont un temps d'extinction après la détection d'un photon de $30 ns$, raison pour laquelle on utilise 2 photodiodes. Les sorties des photodiodes sont reliées à un module de comptage de photons 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 événements "start" et "stop", ce qui, pour un grand nombre d'événements accumulés donne à un facteur de normalisation près la corrélation temporelle du signal avec lui-même. La résolution temporelle du montage est de $400 ps$, limitée par le "jitter" des photodiodes.

Annexe C

Publications

- *Exciton photon strong-coupling regime for a single quantum dot in a microcavity*, E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, et J. Bloch, Phys. Rev. Lett **95**, p067401 (2005)
- *Phonon sidebands in exciton and biexciton emission from single GaAs quantum dots*, E. Peter, J. Hours, P. Senellart, A. Vasanelli, A. Cavanna, J. Bloch, et J.M. Gérard, Phys. Rev. B **69**, p41307(R) (2004)
- *Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot*, J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna, et J. Bloch, Phys. Rev. B **71**, p161306(R) (2005)
- *High-Q whispering-gallery mode in GaAs/AlO_x microdisks*, E. Peter, I. Sagnes, G. Guirleo, S. Varoutsis, J. Bloch, A. Lemaître, et P. Senellart, Appl. Phys. Lett. **86**, p021103 (2005)
- *Few particle effects in the emission of short radiative lifetime single quantum dots*, E. Peter, J. Hours, A. Cavanna, et J. Bloch, Phys. Rev. B **72**, p115302 (2005)

Bibliographie

- [1] 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**, p1138 (1994)
- [2] J.J. Finley, A.D. Ashmore, A. Lemaître, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, I.E. Itskevich, P.A. Maskym, M. Hopkinson, et T.F. Frauss, *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots*, Phys. Rev. B **63**, p073307 (2001)
- [3] 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**, p716, (1994).
- [4] D. Gammon, B.V. Shanabrook, et D.S. Katzer, *Excitons, Phonons, and Interfaces in GaAs/AlAs Quantum-Well Structures*, Phys. Rev. Lett. **67**, p1547, (1991).
- [5] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Bohm, G. Tränkle, et G. Weimann, *Sharp-line photoluminescence of excitons localized at GaAs/AlGaAs quantum well inhomogeneities*, Appl. Phys. Lett. **64**, p3320, (1994).
- [6] D. Gammon, E.S. Snow, et D.S. Katzer, *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **67**, p2391, (1995).
- [7] A. V. Filinov, C. Riva, F. M. Peeters, Yu. E. Lozovik, et M. Bonitz, *Influence of well-width fluctuations on the binding energy of excitons, charged excitons, and biexcitons in GaAs-based quantum wells*, Phys. Rev. B **70**, p035323, (2004).
- [8] Gang Chen, T. H. Stievater, E. T. Batteh, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, et L. J. Sham, *Biexciton Quantum Coherence in a Single Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **88**, p117901, (2002).
- [9] D. Bimberg, J. Christen, T. Fukunaga, H. Nakashima, D. Mars et JN Miller, J. Vac. Sci. Technol. **B5**, p1191, (1987).
- [10] A. Ourmazd, D. W. Taylor, J. Cunningham et C. W. Tu, *Chemical Mapping of Semiconductor Interfaces at Near-Atomic Resolution*, Phys. Rev. Lett. **62**, p933, (1989).
- [11] H. W. M. Salemink et O. Albrektsen, *Atomic-scale composition fluctuations in III-V semiconductor alloys*, Phys. Rev. B **47**, p16044, (1993).
- [12] K. Fujiwara, K. Kanamoto, N. Tsukada, H. Miyatake, et H. Koyama, *Photoluminescence line shape of excitons in GaAs single-quantum wells with and without heterointerface ordering*, J. Appl. Phys. **66**, p1488, (1989).
- [13] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Böhm, et G. Weimann, *Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures*, Phys. Rev. Lett. **72**, p3382, (1994).

- [14] 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**, p3005, (1995).
- [15] D. Gammon, Al. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, et I. A. Merkulov, *Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **86**, p5176, (2000).
- [16] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, et L. J. Sham, *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, p133603 (2001)
- [17] Gang Chen, T. H. Stievater, E. T. Batteh, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, et L. J. Sham, *Biexciton Quantum Coherence in a Single Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **88**, 117901 (2002)
- [18] Xiaoqin Li, Yanwen Wu, D. Steel, D. Gammon, T.H. Stievater, D.S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, et L.J. Sham, *An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot*, Science **301**, 809 (2003)
- [19] J. R. Guest, T. H. Stievater, Xiaoqin Li, Jun Cheng, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Ell, A. Thränhardt, G. Khitrova, et H. M. Gibbs, *Measurement of optical absorption by a single quantum dot exciton*, Phys. Rev. B **65**, p241310R (2002)
- [20] H.J. Kimble, M. Dagenais, et L. Mandel, *Photon antibunching in resonance fluorescence*, Phys. Rev. Lett. **58**, p691, (1977)
- [21] P. Grangier, G. Roger et A. Aspect, *Experimental evidence for a photon antibunching effect on a beam splitter : a new light on single-photon interferences*, Europhys. Lett. **1**, p173, (1986)
- [22] 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**, p617, (1980)
- [23] A. Aspect, P. Grangier, et G. Roger, *Experimental test of realistic local theories via Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **47**, p460, (1981)
- [24] P. Goy, J.M. Raimond, M. Gross, et S. Haroche, *Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission*, Phys. Rev. Lett. **50**, p1903, (1983)
- [25] S. Haroche, et D.Kleppner, *Cavity Quantum Electrodynamics*, Phys. Today, **42-1**, p24, (1989)
- [26] 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**, p1110, (1998).
- [27] 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**, p2828, (2001).
- [28] L.A. Graham, D. L. Huffaker, et D.G. Deppe, *Spontaneous lifetime control in a native-oxide-apertured microcavity*, Appl. Phys. Lett. **74**, p2408, (1999).
- [29] G. Solomon, M. Pelton, et Y. Yamamoto, *Single-mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity*, Appl. Phys. Lett. **86**, p3903,(2001).
- [30] C.H. Bennett et G. Brassard *Quantum key distribution and coin tossing*, Proc. of the IEEE International conference on Computers, Systems, and Signal Processing, **124**, (1984), IEEE, New York

- [31] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. Zhang et E. Hu, *Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure*, Appl. Phys. Lett. **78**, p3932, (2001)
- [32] E. Moreau, I. Robert, J.M. Gérard, I. Abram, L. Manin, et V. Thierry-Mieg, *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities*, Appl. Phys. Lett. **79**, p2865, (2001).
- [33] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G.S Solomon et Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photons device*, Nature, **419**, p594, (2002)
- [34] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip, et I. Abram *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot*, Phys. Rev. B, **72**, p041303, (2005)
- [35] J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna, et J. Bloch, *Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot*, Phys. Rev. B **71**, p161306(R) (2005)
- [36] J. R. Guest, T. H. Stievater, X. Li, J. Cheng, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Ell, A. Thränhardt, G. Khitrova, et M. Gibbs, *Measurement of optical absorption by a single quantum dot exciton*, Phys. Rev. B **65**, p241310 (2002)
- [37] J.-M. Gérard, *Topics of Applied Physics*, Editeur P. Michler, Springer Verlag, Heidelberg, (2003)
- [38] G. Grynberg, A. Aspect et C. Fabre, *Introduction aux lasers et à l'Optique Quantique*, Ellipses, (1997)
- [39] E. M. Purcell, *Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies*, Phys. Rev. **69**, p681, (1946)
- [40] T. Rivera, J-P. Debray, J-M. Gérard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo et J-L. Oudar, *Optical Losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **74**, p911, (1999)
- [41] J. P. Reithmaier, G. Sök, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. Keldysh, V. Kulakovskii, T. L. Reinecke, et A. Forchel, *Strong coupling in a quantum dot micropillar cavity system*, Nature **432**, p197, (2004)
- [42] J. M. Gérard, D. Barrier, J.Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, et T. Rivera, *Quantum boxes as active probes for photonic microstructures : The pillar microcavity case*, Appl. Phys. Lett. **69**, p449 (1996)
- [43] O. J. Painter, A. Husain, A. Scherer, J. D. O'Brien, I. Kim, and P. D. Dapkus, *Room Temperature Photonic Crystal Defect Lasers at Near-Infrared Wavelengths in InGaAsP*, J. Lightwave Technol. **17**, p2082 (1999)
- [44] S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaître, I. Sagnes, F. Raineri, J. A. Levenson, I. Robert-Philip, et I. Abram, *Indistinguishable single photons from a single quantum dot in two-dimensional Photonic Crystal cavity*, Appl. Phys. Lett. **87**, 163107 (2005)
- [45] T. Yoshie, J. Vuckovic, A. Scherer, H. Chen, et G. Deppe, *High quality two-dimensional photonic crystal slab cavities*, Appl. Phys. Lett. **79**, 4289 (2001)
- [46] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard et J. Bloch, *Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **95**, 067401 (2005)

- [47] B. Gayral, Thèse, Université Paris VI, (2000).
- [48] 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**, p1908, (1999)
- [49] 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**, p143, (1997).
- [50] M. Bayer, T.L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. Mc Donald et A. Forchel, *Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators*, Phys. Rev. Lett. **86**, p3168, (2001)
- [51] 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**, p1421, (1998)
- [52] O. Benson, C. Santori, M. Pelton et Y. Yamamoto, *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **84**, p2513, (2000)
- [53] 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**, p5282, (1997)
- [54] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique Quantique*, Hermann, 1973.
- [55] H. Carmichael, R. J. Brecha, M. G. Raizen, H. J. Kimble, et P. R. Rice, *Subnatural linewidth averaging for coupled atomic and cavity-mode oscillators*, Phys. Rev. A **40**, p5516, (1989)
- [56] L.C. Andreani, G. Panzarini et J-M. Gérard, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory*, Phys. Rev. B **60**, p13276, (1999)
- [57] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, Editions de Physique, Paris (1996)
- [58] P.W.Baumeister, *Optical Absorption of Cuprous Oxide*, Phys. Rev. **121**, p359, (1961)
- [59] G.H.Wannier, *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals*, Phys. Rev. **52**, p191, (1937)
- [60] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin, *Solid State Physics*, Holt, Rinhart et Winston, New-York, (1976)
- [61] L.C. Andreani et A. Pascquarello, *Accurate theory of excitons in GaAs – Ga_{1-x}Al_xAs*, Phys. Rev. B **42**, p8928, (1990)
- [62] M. Ramsteiner, R. Hey, R. Klann, U. Jahn, I. Gorbunova, et K. H. Ploog, *Influence of composition fluctuations in Al(Ga)As barriers on the exciton localization in thin GaAs quantum wells*, Phys. Rev. B **55**, p5239, (1997)
- [63] L.C. Andreani, *Confined Electrons and Photons*, p57, Plenum Press, New-York, (1995)
- [64] P.M. Petroff, *Transmission electron microscopy of interfaces in III-V compound semiconductors*, J. Vac. Sci. Technol. **14**, p973,(1977)
- [65] L.C. Andreani, F. Tassone, et F. Bassani, *Radiative Lifetime of Free Excitons in Quantum Wells*, Solid State Commun. **77**, p641, (1991)
- [66] B. Deveaud, F. Clérot, N. Roy, K. Satzke, B. Sermage, D.S. Katzer, *Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells*, Phys. Rev. Lett. **67**, p2355, (1991)
- [67] D.S. Citrin, *Superlattices and Microstructures* **13**, p303, (1993)

- [68] D.S. Citrin, *Radiative lifetimes of excitons in quantum wells : Localization and phase-coherence effects*, Phys. Rev. B **47**, p3832, (1993)
- [69] J. Szczytko, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, et B. Deveaud, *Origin of excitonic luminescence in quantum wells : Direct comparison of the exciton population and Coulomb correlated plasma models*, Phys. Rev. B **71**, p195313 , (2005)
- [70] 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**, p183601, (2001)
- [71] A. Kiraz, S. Fälth, C. Becher, B. Gayral, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, et A. Imamoglu, *Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot*, Phys. Rev. B **65**, p161303(R), (2002)
- [72] F. Diecrich et H. Walther *Non classical radiation of a single excited ion*, Phys. Rev. Lett. **39**, p203, (1987)
- [73] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.P. Poizat et P. Grangier *Non-classical photon statistics from diamond nanocrystals*, Phys. Rev. A **64**, p061802, (2001)
- [74] R. Brouri, A. Beveratos, J.P Poizat et P. Grangier *Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond*, Opt. Lett. **25**, p1294, (2000)
- [75] T. Basché, W.E. Moerner, M. Orrit et P.R. Tapster *Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid*, Phys. Rev. Lett. **69**, p1516, (1992)
- [76] R.H. Brown et R.Q. Twiss *Correlation between photons in two coherent beams of light*, Nature, **177**, p27, (1956)
- [77] M.C. Teich, B.E.A. Saleh, I.C. Khoo, G.P. Agrawal, Y.A. Kravtsov, et K. Creath *Progress in Optics*,**26**, Edition Wolf ed., North Holland
- [78] A. Beveratos, Thèse, Université Paris XI (2002).
- [79] J. Hours, S. Varoutsis, M. Gallart, J. Bloch, I. Robert-Philip, A. Cavanna, I. Abram, F. Laruelle, J.-M. Gérard, *Single photon emission from individual GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **82**, p2206, (2003)
- [80] E. Moreau, Thèse, Université Paris VI (2002).
- [81] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître, et J. M. Gérard, *Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons*, Phys. Rev. Lett. **83**, p4152 (1999)
- [82] K. Huang et A. Rhys *Theory of light and non-radiative transitions in F-Centres*, Proc. Roy. Soc. (London) A204, p406 (1950)
- [83] C.B. Duke et G.D. Mahan *Phonon-Broadened Impurity Spectra. I. Density of States*, Phys.Rev. **139**, pA1965 (1965)
- [84] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*, Phys. Rev. B**63**, p155307 (2001)
- [85] L. Besombes, Thèse, Université Grenoble I, (2001).
- [86] T. Takagahara *Localization and energy transfer of quasi-two-dimensional excitons in GaAs-AlAs quantum-well heterostructures*, Phys. Rev. B **31**, p6552 (1985)
- [87] B. Alen, F. Bickel, K. Karrai, R.J. Warburton, et P.M. Petroff, *Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots*, Appl. Phys. Lett., **83**, p2235 (2003)

- [88] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R.J. Warburton, B.D. Gerardot, et P.M. Petroff, *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **93**, p217401 (2004)
- [89] S. Rudin, T.L. Reinecke, et B. Segall *Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors*, Phys. Rev. B **42**, p11218 (1999)
- [90] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, et L. R. Ram-Mohan, *Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys*, J. Appl. Phys. **89**, p5815 (2001).
- [91] R. Scholz, *Hole-phonon scattering rates in gallium arsenide*, J. Appl. Phys. **77**, p3219 (1995)
- [92] I. Gorczyca, T. Suski, E. Litwin-Staszewska, L. Dmowski, J. Krupski, et B. Etienne, *Deformation potential in a high-electron-mobility GaAs/Ga_{0.7}Al_{0.3}As heterostructure : Hydrostatic-pressure studies*, Phys. Rev. B **46**, p4328 (1992)
- [93] L.C. Andreani et A. Pasquarello *Accurate theory of excitons in GaAs – Ga_{1-x}Al_xAs quantum wells*, Phys. Rev. B **42**, p8928 (1990)
- [94] M. Bayer et A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B, **65**, p041308 (2002)
- [95] D. Birkedal, K. Leosson, et J. M. Hvam, *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett **87**, p227401 (2001)
- [96] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Delalande C. Voisin, Ph. Roussignol, A. Lemaître, et J. M. Gérard, *Efficient acoustic phonon broadening in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **65**, p033313 (2001)
- [97] B. Urbaszek, E. J. McGhee, M. Kräuger, R. J. Warburton, K. Karrai, T. Amand, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, et J. M. Garcia, *Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots : Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering*, Phys. Rev. B **69**, p035304 (2004)
- [98] I. Favero, G. Cassabois, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, Ph. Roussignol, et J. M. Gérard. *Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **68**, p233301 (2003)
- [99] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, et A. D. Wieck, *Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement*, Phys. Rev. B **71**, p115328 (2005)
- [100] T. Takagahara, *Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B, **60**, p2638 (1999)
- [101] E. A. Muljarov et R. Zimmermann, *Dephasing in Quantum Dots : Quadratic Coupling to Acoustic Phonons*, Phys. Rev. Lett, **93**, p237401 (2004)
- [102] 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**, p157401 (2001)
- [103] G. Ortner, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Rudin, T. L. Reinecke, S. Fafard, Z. Wasilewski, et A. Forchel, *Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B, **70**, p201301 (2004)
- [104] O. Heller, Ph. Lelong, et G. Bastard, *Biexcitons bound to single-island interface defects*, Phys. Rev. B **56**, p4702 (1997)
- [105] A. Jankovic, Thèse, Université Paris VI, (2004)

- [106] H. Yu, S. Lycett, C. Roberts, et R. Murray, *Time resolved study of self-assembled InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **69**, p4087 (1996)
- [107] 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**, p4991 (1998)
- [108] E. Dekel, D. V. Regelman, D. Gershoni, et E. Ehrenfreund *Cascade evolution and radiative recombination of quantum dot multiexcitons studied by time-resolved spectroscopy*, Phys. Rev. B **62**, p11038 (2000)
- [109] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard, et A. Forchel, *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic artificial atoms*, Nature **405**, p923(2000)
- [110] 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**, p073310 (2002)
- [111] I. Wilson-Rae et A. Imamoglu, *Quantum dot cavity-QED in the presence of strong electron-phonon interactions*, Phys. Rev. B **65**, p235311 (2002)
- [112] E. Peter, I. Sagnes, G. Guirleo, S. Varoutsis, J. Bloch, A. Lemaître et P. Senellart *High-Q whispering-gallery modes in GaAs/AlOx microdisks*, Appl. Phys. Lett. **86**, p021103 (2005)
- [113] Lord Rayleigh, *Theory of Sound*, Editor MacMillan and Co., Vol.2, Chap. XIV ,p287 (1877).
- [114] G. Mie, *Beitrag zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallosungen*, Ann. Phys., **25**, p337, (1908).
- [115] Lord Rayleigh, *The problem of the whispering gallery*, Scientific Paper, **5**, p617, (1912).
- [116] A.J. Campillo, J.D. Eversole, et H-B. Lin, *Cavity quantum electrodynamics enhancement of stimulated emission in microdroplets*, Phys. Rev. Lett. **67**, p437 (1991)
- [117] V.B. Braginsky, M.L. Gorodetsky, et V.S. Ilchenko, *Quality-factor and non-linear properties of optical whispering-gallery modes*, Phys. Rev. A **137**, p393 (1989)
- [118] M. Kumwata-Gonokami, R.H. Jordan, A. Dodabalapur, H.E. Katz, M.L. Schilling, R.E. Slusher, et S. Ozawa, *Polymer microdisk and microring lasers*, Optics Letters **20**, p2093 (1995)
- [119] M.K. Chin, D.Y. Chu et S.T. Ho *Estimation of the spontaneous factor for microdisk lasers via the approximation of whispering gallery modes*, J. Appl. Phys. **75**, p3302 (1994)
- [120] N.C. Frateschi et A.F.J. Levi *Resonant modes and laser spectrum of microdisks*, Appl. Phys. Lett. **66**, p2932 (1995)
- [121] N.C. Frateschi et A.F.J. Levi *The spectrum of microdisk lasers*, J. Appl. Phys. **80**, p644 (1996)
- [122] R.P. Wang et M.M. Dumitrescu *Theory of optical modes in semiconductor microdisk lasers*, J. Appl. Phys. **81**, p3391 (1997)
- [123] S.M.K.Thiyagarajan, *Scaled microdisk lasers*, Doctoral dissertation (2002)
- [124] R.E. Slusher, A.F.J. Levi, U. Mohideen, S.L. McCall, S.J. Pearton et R.A. Logan *Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers*, Appl. Phys. Lett. **63**, p1310 (1993)
- [125] D.W. Verwooy, V.S. Ilchenko, H. Mabuchi, E.W. Streed, et H.J. Kimble, *High-Q measurements of fused-silica microspheres in the near infrared*, Opt. Lett. **23**, p247 (1998)
- [126] M. Cai, O. Painter, et K.J. Vahala, *Observation of critical coupling in a fiber taper to a silica microsphere whispering-gallery mode system*, Phys. Rev. Lett. **85**, p74 (2000)
- [127] 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**, p289 (1992)

- [128] M.J. Ries, E.I. Chen, N. Holonyak, G.M. Iovino et A.D. Minervini, *Planar native-oxide-based AlGaAs-GaAs-InGaAs quantum well microdisk lasers*, Appl. Phys. Lett. **68**, p1540 (1996)
- [129] B. Corbett, J. Justice, L. Considine, S. Walsh et W.M. Kelly *Low-threshold lasing in novel microdisk geometries*, IEEE Photon. Tech. Lett. **8**, p885 (1996)
- [130] J.-M. Gérard et B. Gayral, *Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities*, J. Lightwave Technol. **17**, p2089 (1999)
- [131] Y. Xu, R.K. Lee et A. Yariv *Finite-difference time-domain analysis of spontaneous emission in a microdisk cavity*, Phys. Rev. A **61** p033808 (2000)
- [132] K. Srinivasan, *Semiconductor Optical Microcavities for Chip-Based Cavity QED*, California Institute of Technology, Thèse (2006)
- [133] R.A. Mair, K.C. Zeng, J.Y. Lin, H.X. Jiang, B. Zhang, L. Dai, A. Botcharev, W. Kim, H. Morkoç et M.A. Khan *Optical modes within III-nitride multiple quantum well microdisk cavities*, Appl. Phys. Lett. **72**, p1530 (1998)
- [134] C. Vieu et D. Maily, *Les Procédés de lithographie et de gravure in Les nanosciences : nanotechnologies et nanophysique*, Editeurs Ph. Houdy, C. Dupas et M. Lahmani, Belin, p15, Paris,(2004).
- [135] R.J. Warburton, D.S. Dürr, K. Karrai, J.P. Kothaus, G. Medeiros-Ribeira et P.M. Petroff, *Charged excitons in self-assembled semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **79**, p5282 (1997)
- [136] 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**, p1908 (1999)
- [137] J.M. Dallesasse, N. Holonyak, Jr., A. R. Sugg, T. A. Richard, et N. El-Zein, *Hydrolyzation oxidation of $Al_xGa_{1-x}As$ -AlAs-GaAs quantum well heterostructures and superlattices*, Appl. Phys. Lett. **57**, p 2844 (1990)
- [138] Kent D. Choquette, K. L. Lear, R. P. Schneider, Jr., et K. M. Geib, *Cavity characteristics of selectively oxidized vertical-cavity lasers*, Appl. Phys. Lett. **66**, p3413 (1995)
- [139] M.H. Macdougall, H. Zhao, P.D. Dapkus, M. Ziari et W.H. Steier, *Wide-bandwidth distributed Bragg reflectors using oxide.GaAs multilayers*, Electron. Lett **30**, p1147 (1994)
- [140] A.M. Yacomotti, F. Raineri, G. Vecchi, I.Sagnes, M. Strassner, L. Gratiet, R. Raj, A. Levenson, *Ultra-fast nonlinear response around 1.5 μm in 2D AlGaAs/AlOx photonic crystal* Appl. Phys. B **81**, p333 (2005)
- [141] T. Kipp, K. Petter, Ch. Heyn, D. Heitmann et C. Schüller, *Broadband emission and low absorption in microdisks with AlGaAs quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **84**, p1477 (2004)
- [142] K. Young, L. Zhang, D. D. Awschalom et E. L. Hu, *Coherent coupling dynamics in a quantum-dot microdisk laser*, Phys. Rev. B **66**, p081307 (2002)
- [143] Welford et A. Mooradian, *Observation of linewidth broadening in (GaAl)As diode lasers due to electron number fluctuations*, Appl. Phys. Lett. **40**, p560 (1983)
- [144] K.J. Vahala et A. Yariv, *Occupation fluctuation noise : A fundamental source of linewidth broadening in semiconductor lasers*, Appl. Phys. Lett. **43**, p140 (1983)
- [145] J.T. Verdeyen, *Laser Electronics*, 3ème édition, Prentice-Hall Inc., ch3, New Jersey (1995)
- [146] T.D. Lee, P.H. Cheng, J.S. Pan, R.S. Tsai, Y. Lai et K. Tai, *Far-field emission narrowing effect of microdisks lasers*, Appl. Phys. Lett. **72**, p2223 (1998)

- [147] A.F.J. Levi, R.E. Slusher, S.L. McCall, J.L. Glass, S.J. Pearton et R.A. Logan, *Directional light coupling from microdisk lasers*, Appl. Phys. Lett. **62**, p561 (1993)
- [148] S.A. Backes, J.R.A. Cleaver, A.P. Heberle et K. Koehler, *Microdisk laser structures for output coupling microdisks lasers*, Journ. of Vac. Sc. and Technol. B **16**, p3817 (1998)
- [149] D.Y. Chu, M.K. Chin, W.G. Bi, H.Q. Hou, C.W. Tu et S.T. Ho *Double-disk structure for output coupling microdisk lasers*, Appl. Phys. Lett. **65**, p3167 (1994)
- [150] K. Srinivisan, A. Stintz, S. Krishna et O. Painter, *Photoluminescence measurements of quantum-dot-containing semiconductor microdisk resonators using optical fiber taper waveguides*, arXiv :physics **1**, 0506105 (2005).
- [151] K. Srinivisan, P.E. Barclay, M. Borselli et O. Painter, *Optical-fiber-based measurement of an ultrasmall volume high-Q photonic crystal microcavity*, Phys. Rev. B, **70**, 081306(R) (2004)
- [152] M. Borselli, K. Srinivisan, P.E. Barclay, et O. Painter, *Rayleigh scattering, mode coupling, and optical loss in silicon microdisks* , Appl. Phys. Lett., **85**, 3693 (2004)
- [153] R. Haberman, *Elementary applied partial differential equations with Fourier series and boundary value Problems*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New jersey, 1997
- [154] T. Kippenberg, S. Spillane et K. Vahala, *Modal coupling in traveling-wave resonators*, Opt. Lett., **27**, 1669 (2002)
- [155] K. Srinivisan, M. Borselli, T.J. Johnson, P.E. Barclay, O. Painter, A. Stintz et S. Krishna, *Optical loss and lasing characteristics of high-quality-factor AlGaAs microdisk resonators with embedded quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **86**, 151106 (2005)
- [156] A. Löffler, J.P. Reithmaier, G. Sek, C. Hofman, S. Reitzenstein, M. Kamp, et A. Forchel, *Semiconductor quantum dot microcavity pillars with high-quality factors and enlarged dot dimensions*, Appl. Phys. Lett. **86**, 111105 (2005)
- [157] E. Grilli, M. Guzzi, R. Zamboni et L. Pavesi, *High-precision determination of the temperature dependence of the fundamental energy gap in gallium arsenide*, Phys. Rev. B **45**, p1638, (1992)
- [158] E. Peter, J. Hours, P. Senellart, A. Vasanelli, A. Cavanna, J. Bloch, et J-M. Gérard, *Phonon sidebands in exciton and biexciton emission from single GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **69**, R041307, (2004)
- [159] 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**, p157401 (2001)
- [160] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin et D. G. Deppe, *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*, Nature **432**, p200 (2004)
- [161] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song et S. Noda, *High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal*, Nature, **425**, p944 (2003)
- [162] N. Le Thomas, U. Woggon, O. Schöps, M.V. Artemyev, M. Kazes, et U. Banin, *Cavity QED with Semiconductor Nanocrystals*, Nano Lett., **6**, p557 (2006)
- [163] K. Henessy, A. Badolato, P.M. Petroff, et E. Hu, *Positioning photonic crystal cavities to single InAs quantum dots*, in Photonics and Nanostructures-Fundamental and applications, Elsevier, **2**, p65 (2004)
- [164] C. F. Wang, A. Badolato, I. Wilson-Rae, P. M. Petroff, E. Hu, J. Urayama, et A. Imamoglu, *Optical properties of single InAs quantum dots in close proximity to surfaces*, Appl. Phys. Lett. **85**, p3423 (2004)

- [165] N.G. Stoltz, M. Rakher, S. Strauf, A. Badolato, D.D. Lofgreen, P.M. Petroff, L.A. Coldren, et D. Bouwmester, *High-quality factor optical microcavities using oxide apertured micropillars*, Appl. Phys. Lett. **87**, p031105 (2005)
- [166] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P.M. Petroff, et A. Imamoglu, *Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes*, Science **308**, p5725 (2005)
- [167] K. Hennessy, A. Badolato, P.M. Petroff, et E. Hu, *Tuning photonic crystal nanocavity modes by wet chemical digital etching*, Appl. Phys. Lett., **87**, p021108 (2005)
- [168] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Toc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, EDP Science, Paris (2001)
- [169] R. E. Grove, F. Y. Wu, et S. Ezekiel, *Measurement of the spectrum of resonance fluorescence from a two-level atom in an intense monochromatic field*, Phys. Rev. A **15**, p227 (1977)
- [170] 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**, p617 (1980)
- [171] S.H. Autler and C.H. Townes, *Stark Effect in Rapidly Varying Fields*, Phys. Rev. **100**, 703 (1955)
- [172] K.M. Birnbaum, A. Boca, R. Miller, A.D. Boozer, T.E. Northup et H.J. Kimble, *Photon blockade in an optical cavity with one trapped atom*, Nature **436**, p87 (2005)

