HAL
open science

# Étude du régime de Purcell pour une boîte quantique unique dans une microcavité semiconductrice. Vers une non-linéarité optique géante.

Mathieu Munsch

## To cite this version:

Mathieu Munsch. Étude du régime de Purcell pour une boîte quantique unique dans une microcavité semiconductrice. Vers une non-linéarité optique géante.. Physique [physics]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2009. Français. NNT : . tel-00464044

**HAL Id: tel-00464044**

**https://theses.hal.science/tel-00464044**

Submitted on 15 Mar 2010

**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.

École Doctorale de Physique, Grenoble
UFR de Physique

# Étude du régime de Purcell pour une boîte quantique unique dans une microcavité semiconductrice.

## *Vers une non-linéarité optique géante.*

**THÈSE**

présentée et soutenue publiquement le 15 décembre 2009
pour l'obtention du

**Doctorat de l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1**
**(Spécialité Physique)**
par

**MUNSCH Mathieu**

Composition du jury :

| | |
|---|---|
| Mr. CASSABOIS Guillaume | Rapporteur |
| Mr. SEASSAL Christian | Rapporteur |
| Mr. GHEERAERT Etienne | Président du jury |
| Mme. SENELLART Pascale | Examinateur |
| Mr. PETROFF Pierre | Examinateur |
| Melle AUFFÈVES Alexia | Co-directrice de thèse |
| Mr. POIZAT Jean-Philippe | Directeur de thèse |

Equipe mixte CNRS/CEA/UJF "Nano-Physique et Semi-Conducteurs"
Département Nanosciences - Institut Néel - Grenoble

*A mes parents, Frédéric et Isabelle*

## Remerciements

Comme tous les jeunes docteurs parvenus avant moi au moment de rédiger ces quelques lignes, je me rends aujourd'hui compte de la quantité de travail que représente une thèse, mais aussi de l'importance des gens qui m'ont entouré, et qui ont, de près ou de loin, contribué à cette réussite. C'est donc avec plaisir que je leur dédie ces quelques lignes.

Tout d'abord, j'aimerais remercier Benoît Boulanger et Alain Fontaine de m'avoir accueilli, d'abord au Laboratoire de Spectrométrie Physique, puis à l'Institut Néel, où notre équipe a déménagé au cours de ma thèse. L'atmoshpère conviviale de ces deux endroits a largement contribué à rendre mon travail agréable.

Naturellement, je tiens ensuite à remercier Alexia Auffèves et Jean-Philippe Poizat pour m'avoir donné l'opportunité de travailler avec eux sur ce sujet. Leur encadrement complémentaire m'a permis de progresser rapidement dans de nombreux domaines de même que l'autonomie qu'ils m'ont accordée m'a donné la possibilité d'apprendre de mes erreurs. J'ai ainsi pu faire mon chemin entre la rigueur théorique d'Alexia et l'intuition expérimentale de Jean-Philippe avec qui la physique se discute "avec les mains". Leur grande disponibilité et leurs qualités humaines ont été plus que précieuses pour moi, particulièrement dans les moments difficiles. Notre relation a par ailleurs rapidement dépassé le cadre strictement professionnel et se poursuivra, j'en suis convaincu, bien au delà de cette aventure. Peut-être aurons nous l'occasion de nous retrouver en "ligue des champions"...

Si Alexia et Jean-Philippe sont un peu mes "maman" et "papa" de la physique, Signe Seidelin et Alexis Mosset sont certainement mes grande-soeur et grand-frère. Je dois à Alexis mes premiers pas sur une manipe d'optique et près de deux ans d'interaction quasi-quotidienne, peut-être pendant la période la plus difficile, alors que nous pataugions dans des résultats incompréhensibles. Signe est arrivée en qualité de maîtresse de conférence en décembre 2007, apportant avec elle fraîcheur et enthousiasme ! Son aide et ses conseils m'ont évité de perdre beaucoup de temps, notamment pour la rédaction de notre premier article et son soutien a été décisif plus d'une fois.

Je tiens aussi à remercier Jean-Michel Gérard, Bruno Gayral et Julien Claudon avec qui nous nous sommes régulièrement assis autour d'une table pour discuter de nos résultats. Leur expérience et la pertinence de leurs remarques nous ont souvent permis de considérer les choses sous un angle nouveau.

Avant d'aller plus loin, je tiens également à remercier les membres de mon jury, et tout particulièrement Guillaume Cassabois et Christian Seassal, qui ont accepté de relire et corriger ce mémoire attentivement. Je remercie également Etienne Gheeraert, Pierre Petroff et Pascale Senellart qui m'ont fait l'honneur d'assister à l'ultime examen de mes études.

Ce travail est également le fruit de nombreuses collaborations, qui ont toutes contribuées à enrichir mon expérience. Je souhaite donc remercier Ségolène Olivier-Gayral, Yoanna Nowicki et Jean-Michel Gérard du CEA Grenoble, qui nous ont fourni nos premiers échantillons ; les

lyonnais Patrick Nédel, Christian Seassal et Xavier Letartre, qui m'ont initié aux cristaux photoniques ; et finalement Aristide Lemaître, Isabelle Sagnes et Pascale Senellart, qui nous ont envoyés les échantillons à partir desquels les résultats présentés ici ont été obtenus. Un merci particulier à Pascale, avec qui j'ai pu discuter de toutes mes bizarreries expérimentales et dont l'expérience en la matière a été très précieuse.

Je n'oublie pas non plus nos collaborations coréennes, et l'enthousiasme débordant de Seungkyu Ha lorsqu'il est venu passer un moment en France. Moi-même je garde un excellent souvenir de ma visite en Corée et de l'accueil qui nous a été réservé. Un grand merci donc à l'équipe de Won Jun Choi, avec laquelle Gregory et moi avons passé une soirée mémorable... Vive le soju !

J'en arrive justement à mes compagnons d'armes, à qui je dois de nombreuses heures de mal de crâne devant un tableau blanc, des crampes de poignet pour battre des records de powerball et des tacles aux chevilles car ce sont de piètres footballeurs : Grégory Sallen et Thomas Clément, désormais tous les deux docteurs (si si, les deux !). Si la thèse est une expérience difficile, c'est bien parce qu'on ne choisit pas ses co-bureaux. Je remercie quand même vite fait Gregory, qui m'a filé à peu près un milliard de coups de main en salle de manipe. J'avoue, c'était cool. J'ai également une pensée pour Yoan Léger, qui est passé du coté obscur et dit désormais septante et nonante, ce qui, soyons francs, ne veut rien dire, et Jacek Karpszack, tout nouveau CNRS, qui finissait sa thèse à mon arrivée et a qui je dois mon premier couplage fort à l'ambiante.

Je remercie aussi toute l'équipe NPSC, avec qui ça aura été un plaisir de partager des cafés : Maxime Richard et Gilles Nogues, qui m'ont filé un bon coup de main dans la préparation de mes oraux, Henri Mariette, toujours prêt à perdre un peu de temps pour discuter avec un thésard, Le Si Dang, qui m'a révélé les secrets de l'alignement parfait alors que je débutais, Lucien Besombes, l'homme qui ne s'arretait jamais de maniper, David Ferrand et Joël Bleuse. Je tiens aussi à remercier Fabrice Donatini et Edouard Wagner, sans l'aide de qui maniper serait toujours un enfer. Leurs contributions pour améliorer le fonctionnement de la manipe et automatiser certaines opérations ont beaucoup simplifié mon quotidien. De même, le travail de Pierre Perrier, Laurent Del-Rey et tous les collègues de l'atelier méca ne saurait être négligé.

Je remercie également les post-docs de l'équipe : Paulo Gomes, qui a pris le relai sur la manipe et annoncé une véritable invasion brésilienne, Stefano Portolan, italien parlant l'anglais, le français, le portugais et l'hamiltonien couramment et Roman Kolodka, a qui je dois d'avoir écouté du jazz ukrainien ! Enfin, je souhaite bon courage à la jeune génération : la cuvée thésard 2008 composée de Claire Le-Gall, qui court le Iron-man entre deux réductions de matrice densité $47 \times 47$, Samir Bounouar, amateur de viande et de batailles navales et Aurélien Trichet dont la mission est de te trouver un padawan de Go pour perpetuer une tradition initiée par Greg ! Bonne chance aussi à la cuvée thésard 2009 composée de Igor Diniz et Daniel Valente, qui chantent le Brésil dans leur bureau, et d'Inah Yeo, qui, j'en suis sûr, va faire un carton avec cette manipe !

Je tiens également à remercier l'ensemble du personnel administratif du département Nano, pour sa gentillesse et sa réactivité ainsi que Sandrine Ferrari de l'école doctorale, et Cécile Nemiche, qui m'a permi d'imprimer ce manuscrit et ses versions précédentes dans des temps records.

J'aimerai encore faire un big up à toute la bande de thésard de l'Institut Néel (et courage à ceux qui sont dans la dernière ligne droite !), dont la bonne humeur est toujours communicative, à celle, plus discrète, du LAOG, avec qui j'ai déjeuné pendant plus d'un an et à la team SPECTRO, avec laquelle nous avons remporté le titre de champion du campus, malgré un gardien de but douteux. Un merci particulier à Johan Olofsson, Benoit Vianay et Nicolas Roch, les mousquetaires de la recherche, avec qui j'ai révolutionné mille fois la science. Mes amis, désormais la gloire nous attend !

Pour finir, j'aimerai remercier ma famille et bien sûr mes parents, sans lesquels rien de tout cela ne serait possible. Non seulement vous m'avez assuré les moyens matériels de poursuivre mes études, mais en plus vous m'avez transmis cette curiosité, cette soif d'apprendre et de mieux connaître le monde, ce qui est, je pense, l'essence même de ce travail. Enfin, j'adresse ces derniers mots à la personne qui compte le plus pour moi. Claire, tu as été pour moi plus qu'un soutien indéfectible et chercher sans toi à mes cotés n'aurait pas la même saveur. Pour tout, merci !

# Table des matières


Notations . . . . . 1

**1 Introduction** **3**

**2 Ingrédients d'EDQC en physique du solide** **9**

2.1 Rappels d'électrodynamique quantique en cavité . . . . . 10

2.1.1 Avant-propos . . . . . 10

2.1.2 Couplage faible . . . . . 11

2.1.3 Régime de couplage fort . . . . . 15

2.2 La boîte quantique, un atome artificiel . . . . . 16

2.2.1 Semi-conducteurs et nanostructures . . . . . 17

2.2.2 Croissance des boîtes quantiques . . . . . 19

2.2.3 Photoluminescence des boîtes quantiques . . . . . 21

2.3 Microcavités optiques . . . . . 23

2.3.1 Rappels sur les cavités planaires . . . . . 23

2.3.2 Modification du taux d'émission dans les cavités planaires - Vers une réduction de la dimensionnalité . . . . . 25

2.3.3 Cristaux photoniques . . . . . 27

2.3.4 Micropiliers . . . . . 28

**3 Caractérisations optiques** **33**

3.1 Dispositif expérimental . . . . . 34

3.1.1 Cryostat à doigt froid . . . . . 34

3.1.2 Excitation optique . . . . . 36

3.1.3 Système d'imagerie . . . . . 37

3.1.4 Éléments de détection . . . . . 37

3.2 Caractérisation optique et expériences préliminaires . . . . . 40

3.2.1 Description de l'échantillon . . . . . 40

3.2.2 Expérience de micro-photoluminescence . . . . . 41

3.3 Mesure du facteur de qualité . . . . . 44

3.3.1 Comment mesurer le facteur de qualité dans une expérience de micro-photoluminescence . . . . . 44

3.3.2 Comparaison avec une expérience de réflectivité . . . . . 46

3.3.3 Mesure du facteur de qualité en fonction du diamètre . . . . . 48

3.4 Avant-propos concernant les chapitres 4 et 5 . . . . . 49

**4 Mesure de l'effet Purcell sous excitation continue** **51**
4.1 Manifestation de l'effet Purcell dans une expérience typique de photoluminescence en continu . . . 52
4.1.1 Approche qualitative . . . 52
4.1.2 Modélisation d'une boîte quantique en cavité . . . 52
4.1.3 Ajustement des données . . . 55
4.2 Mesures des taux de pompage à saturation . . . 57
4.3 Mesures des intensités de saturation . . . 60
4.4 Intensité de photoluminescence à puissance de pompe fixée . . . 63
4.5 Evaluation du rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ . . . 65
4.6 Conclusion . . . 66

**5 Mesure de l'effet Purcell lors d'une expérience résolue en temps** **69**
5.1 Mesure du taux de relaxation . . . 71
5.1.1 Principe de la mesure . . . 71
5.1.2 Description du montage expérimental . . . 72
5.1.3 Calibration et réponse instrumentale . . . 74
5.2 Cas de l'émetteur désaccordé . . . 76
5.2.1 Mesure du temps de déclin . . . 76
5.2.2 Modèle théorique . . . 78
5.2.3 Ajustement des données expérimentales . . . 80
5.3 Cas de l'émetteur à résonance . . . 81
5.3.1 Temps de déclin - différences avec le cas non résonant . . . 81
5.3.2 Rôle des émetteurs désaccordés . . . 82
5.3.3 Adaptation du modèle . . . 85
5.4 Conclusions . . . 86
5.4.1 Evolution du temps de vie avec le désaccord . . . 86
5.4.2 Discussion . . . 88

**6 Vers l'absorption d'une boîte quantique unique** **93**
6.1 Atome uni-dimensionnel . . . 94
6.1.1 Principe général . . . 94
6.1.2 Spectroscopie de l'atome 1D . . . 95
6.1.3 Non-linéarité géante . . . 96
6.1.4 Influence des pertes . . . 97
6.2 Solution expérimentale . . . 99
6.3 Stratégies expérimentales pour la mesure de non-linéarités . . . 100
6.3.1 Schéma expérimental . . . 100
6.3.2 Balayage de la résonance par la diode laser . . . 101
6.3.3 Balayage en température . . . 102
6.4 Simulations . . . 102
6.5 Conclusions et perspectives . . . 107

**7 Conclusion** **109**

**Bibliographie** **122**

**A Couplage déterministe** **123**

| |
|---|
| $c = 3 \times 10^8\ m.s^{-1}$ : vitesse de la lumière dans le vide<br>$h = 6,626 \times 10^{-34}\ kg.m^2 \Delta s^{-1}$ : constante de Planck<br>$\epsilon_0 = 8,854 \times 10^{-12} A^2.s^4.kg^{-1}.m^{-3}$ : permittivité diélectrique du vide |
| $n$ : indice optique<br>$\omega$ : fréquence de pulsation<br>$\omega_0$ : fréquence de pulsation de la cavité<br>$\Delta = \omega - \omega_0$ : désaccord spectral<br>$\lambda$ : longueur d'onde<br>$\rho$ : densité d'états<br>$\rho_{libre}$ : densité d'états dans l'espace libre<br>$r$ : taux de pompage<br>$\Gamma$ : taux d'émission spontanée de l'atome<br>$\tau$ : temps de vie radiatif de l'atome<br>$\Gamma_{libre}$ : taux d'émission spontanée de l'atome dans l'espace libre<br>$\gamma$ : taux d'émission spontanée de l'atome dans les modes de pertes de la cavité<br>$\tau_p$ : temps de vie du photon dans la cavité<br>$\kappa = 1/\tau_p$ : taux de pertes de la cavité<br>$Q = \omega_0/\kappa$ : facteur de qualité de la cavité<br>$Q_0$ : facteur de qualité de la cavité planaire<br>$V_{eff}$ : volume effectif du mode de la cavité<br>$F_p$ : facteur de Purcell<br>$F$ : facteur de Purcell effectif<br>$\beta$ : coefficient de couplage au mode de cavité<br>$\mathbf{E}$ : champ électrique<br>$a, a\dagger$ : opérateurs d'annihilation et de création d'un photon dans la cavité<br>$\sigma-, \sigma+$ : opérateurs décrivant le passage d'un atome de l'état excité (resp. fondamental) vers l'état fondamental (resp. excité)<br>$r$ : taux de pompage<br>$P$ : puissance d'excitation<br>$p_X, p_{XX}$ : population des niveaux excitonique ($X$) et biexcitonique ($XX$)<br>$I_{X,det}$ : intensité de photoluminescence collectée par le dispositif expérimental<br>$I_X^{leak}$ : intensité de photoluminescence émise dans les modes de pertes et collectée par le dispositif expérimental<br>$I_X^{cav}$ : intensité de photoluminescence émise dans le mode de cavité et collectée par le dispositif expérimental<br>$\chi_{leak}$ : efficacité de collection des modes de pertes<br>$\chi_{cav}$ : efficacité de collection du mode de cavité |

TABLE 1 – Principales notations utilisées.

# Chapitre 1

# Introduction

### Electrodynamique quantique en cavité : le paradigme de la physique atomique

Les débuts de l'électrodynamique quantique en cavité (EDQC) remontent au milieu du XX$^e$ siècle, lorsqu'E.M Purcell démontre que les propriétés radiatives d'un émetteur peuvent être modifiées par la présence d'une cavité résonnante [1]. Ce résultat est fondamental puisqu'il démontre qu'il est possible de contrôler l'émission spontanée d'un émetteur en confinant le champ électromagnétique. Au début des années 80, ce travail est repris par Kleppner, qui considère cette fois le problème du point de vue opposé et montre comment inhiber l'émission spontanée d'un émetteur en le découplant du champ [2]. Peu de temps après, la première observation expérimentale de l'effet Purcell est réalisée dans le groupe de S.Haroche sur un ensemble d'atomes de Rydberg dans une cavité micro-onde [3]. Ce résultat est rapidement suivi par ceux de Hulet, démontrant cette fois une inhibition de l'émission [4], et de Heinzen [5] dans le cas de cavités optiques.

Une nouvelle étape est franchie en 1983 lorsque Kaluzni et. al. atteignent le régime de *couplage fort* [6]. Dans ce régime, le couplage est tel que l'absorption de l'émetteur [1] domine les pertes de la cavité. Les photons entrent alors dans un cycle d'absorptions et d'émissions jusqu'à ce qu'il s'échappent définitivement de la cavité. Ce phénomène est connu sous le nom d'oscillations de Rabi et dérive directement du modèle de Jaynes et Cummings établi en 1963 [7]. D'abord observé sur une collection d'atomes, le couplage fort est finalement atteint peu de temps après pour un atome unique à la fois dans les domaines micro-onde et optique [8, 9].

Pour comprendre le laps de temps écoulé entre les premières intuitions théoriques et les démonstrations expérimentales, il faut bien saisir la difficulté technique de ce type d'expériences, associée à la nécessité de travailler avec des cavités d'excellente qualité. En effet, l'exaltation du taux d'émission spontanée est proportionnelle à $\frac{Q}{V}\lambda^3$ où $Q$ est le facteur de qualité de la cavité, $V$ le volume du mode confiné et $\lambda$ la longueur d'onde du champ (ce résultat est donné dans [1] et sera démontré dans le chapitre 2). Dans le cas des atomes de Rydberg, on peut montrer que $V \sim \lambda^3$, ce qui permet aux auteurs de [3] d'évaluer le facteur de qualité requis pour réaliser une expérience dans le régime de Purcell, soit $Q \simeq 10^6$ ! Des efforts considérables ont

1. égale au taux d'émission spontanée dans la théorie d'Einstein

ainsi été réalisés pour concevoir des miroirs de très haute qualité, conçus à base de matériaux supraconducteurs refroidis à des températures de l'ordre de la dizaine de kelvins.

Aujourd'hui, les facteurs de qualité atteints ($Q \simeq 10^9$) sont tels que les photons sont piégés dans la cavité près d'une seconde [10]. Ces résultats exceptionnels ont permis de sonder le monde quantique encore plus profondément et notamment de manipuler des états intriqués entre atomes et photons [11, 12, 13], de créer de nouvelles situations EPR où les atomes sont corrélés à des distances macroscopiques via l'interaction champ cavité [14], ou encore d'observer des superpositions d'états quasi-classiques du champ électromagnétique (chats de Schrödinger) [15, 16].

Mais outre l'aspect fondamental, l'atome en cavité présente également un intérêt dans le cadre du traitement de l'information quantique. Parmi les applications suggérées qui permettent de tirer profit des possibilités offertes par la mécanique quantique, on peut citer la génération de nombres aléatoires [17], la simulation quantique [18] ou encore l'ordinateur quantique [19]. Ce dernier a largement attiré l'attention depuis la découverte par Shor, en 1994, d'un algorithme de factorisation efficace [20]. Dans ce cadre, l'interaction atome-photon semble prometteuse. En effet, un système à deux niveaux est l'équivalent formel d'un spin et constitue le bit quantique (ou qubit), sur lequel il est possible de stocker une information. Le photon fait alors office de bus ou de qubit volant, capable de transporter l'information sur de très longues distances [21]. Parmi les avancées effectuées dans ce domaine, on pourra citer la réalisation de portes logiques de phase [22, 23] (voir également le chapitre 6) et de sources de photons uniques à partir d'un ensemble d'atomes [24].

### L'émergence des systèmes solides

La fin du XX$^e$ siècle est également marquée par l'émergence de systèmes solides qui présentent les caractéristiques d'un atome artificiel.

Au cours des années 80 sont réalisées les premières boîtes quantiques à partir de matériaux semiconducteurs, dans lesquelles les électrons sont confinés sur des distances nanométriques et occupent des niveaux d'énergie discrets. La recherche autour de ces objets est d'abord motivée par la nanophotonique et le désir d'améliorer les composants opto-électroniques existant, comme la diode électroluminescente et la diode laser, jusque là réalisées à partir de puits quantiques. En effet, dès 1982, il est suggéré que l'abaissement de la dimensionnalité du milieu actif d'une diode laser permettrait de diminuer le seuil laser et de réduire la sensibilité à la température [25, 26]. En 1987, Yablonovitch entrevoit la possibilité d'utiliser les mécanismes de l'EDQC et notamment l'effet Purcell pour réaliser des dispositifs opto-électroniques plus performants [27]. S'il est bien connu que l'émission spontanée est une source de pertes, Yablonovitch est cependant le premier à reconsidérer le problème à partir des concepts de l'EDQC, et la première observation, en 1994, du couplage fort entre un puit quantique et un photon marque le point de départ de l'EDQC dans les systèmes solides.

L'effet Purcell est observé pour la première fois en 1998 sur un ensemble de boîtes quan-

tiques insérées dans un micropilier [28], puis en 2001 sur une boîte quantique unique [29]. Le régime de couplage fort est lui aussi atteint quelques années plus tard [30, 31], grâce à un effort constant pour améliorer la qualité des cavités. Plus récemment, il a été montré la possibilité de générer des paires des photons intriquées à partir d'une boîte quantique [32, 33] ainsi que la possibilité d'obtenir une non-linéarité optique [34, 35] ou des champs non classiques [36] à partir du couplage fort d'une boîte quantique avec un cristal photonique, démontrant ainsi la pertinence de ces systèmes dans le cadre de l'information quantique évoqué plus haut.

Signalons également une autre approche qui s'est développée dans les circuits électriques supraconducteurs, après la démonstration en 1998 du transport cohérent d'une paire de Cooper à travers une jonction Josephson [37]. Ce résultat,fondamental puisqu'il permet d'envisager la réalisation d'un qubit dans ces systèmes, est en effet confirmé quelques années plus tard, lorsque Nakamura et. al. puis Vion et. al. montrent la possibilité de contrôler et de manipuler les états quantique d'un circuit électrique à partir d'une boîte à paires de Cooper [38, 39]. Ces résultats ouvrent de nombreuses perspectives parmi lesquelles la possibilité de réaliser des expériences d'EDQC. La situation est en effet très favorable de ce point de vue : le volume des résonateurs est très petit ($V \sim 10^{-5}\lambda^3$) et la taille du dipole est importante [40], ce qui confère au système une grande force d'oscillateur. Cette conjoncture favorable explique en partie l'essor extraordinaire de ce domaine dans les dernières années, où l'on est passé, au cours des cinq dernières années, de l'observation du couplage fort [41] à la génération d'états de Fock à plusieurs photons [42, 43] !

## Contexte de ce travail

### Boîtes quantiques en microcavités semiconductrices

L'engouement que l'on peut constater aujourd'hui concernant les systèmes solides repose en définitive sur deux avantages, essentiels d'un point de vue applicatif : d'une part ils sont potentiellement intégrables dans un circuit, et d'autre part ils sont réalisables à grande échelle. En revanche, dans ce type de systèmes, il faut faire face à un obstacle important associé à une plus grande influence de l'environnement et qui limite les possibilités de manipulation des états du système : la décohérence. Ce problème est intrinsèque aux systèmes solides et lié à la matrice solide environnante.

Jusqu'à aujourd'hui, la physique atomique a fourni un cadre à l'étude des effets d'électrodynamique en cavité. Ce rôle particulier tient au fait qu'elle propose un système très proche du cas idéal du système à deux niveaux couplé avec un mode de champ unique de la cavité. Pendant longtemps, les expériences d'EDQC réalisées sur des systèmes solides ont donc tenté (parfois avec succès !) de reproduire les situations déjà observées en physique atomique et de les interpréter avec les modèles hérités de cette physique. Il s'avère cependant que l'EDQC dans les systèmes solides présente des caractéristiques qui lui sont propres, liées au fait que le système à deux niveaux n'est plus isolé de l'environnement. Dans le cas des boîtes quantiques en particulier, ce couplage peut être important et modifier les observations de manière singulière [44, 45, 46]. Il apparaît donc aujourd'hui qu'un modèle plus fin du système boîte quantique en

cavité est nécessaire pour décrire la physique de ces systèmes.

Enfin, on attire l'attention du lecteur sur le fait que ce couplage ne constitue pas nécessairement un inconvénient mais peut être transformé en une ressource supplémentaire. Il a par exemple été proposé d'utiliser le déphasage pur pour réaliser une source de photons uniques moins sensible à la diffusion spectrale [47].

### Pourquoi étudier le régime de Purcell - Objectifs de la thèse

Il est peut-être utile ici de préciser l'intérêt aujourd'hui d'une étude approfondie de la mesure du facteur de Purcell. En effet, les expériences rapportées ces dernières années concernent davantage des systèmes dans le régime de couplage fort alors que le système que nous étudions ici présente, au contraire, un facteur de Purcell relativement modeste, qui le situe clairement dans le régime de couplage faible. Tout d'abord, il est intéressant d'étudier la possibilité de réaliser des fonctions complexes à partir des systèmes les plus simples possibles. En l'occurence, l'observation de l'effet Purcell ne requiert pas la même exigence en terme de qualité de fabrication que dans le cas du couplage fort. Notre étude concernant l'obtention d'une non-linéarité géante dans le régime de Purcell (voir chapitre 6) s'inscrit donc dans cet objectif. D'autre part, il est intéressant de noter, même si ce résultat étonnant est le fruit d'une conjoncture particulière (voir partie 2.3.4), que la source de photons la plus efficace réalisée aujourd'hui est obtenue à partir d'un facteur de Purcell de 3 seulement[48] ! Ce résultat montre que la course au facteur de qualité le plus haut n'est pas une étape indispensable pour réaliser des composants ultimes, mais qu'en fonction de l'application, des systèmes très performants peuvent être obtenus à partir de compromis stratégiques. Enfin, on pourra noter les travaux de Santori ou Varoutsis, mettant en évidence le rôle de l'effet Purcell pour restaurer l'indiscernabilité de photons uniques [49, 50].

En ce qui concerne la mesure du facteur de Purcell, qui quantifie l'exaltation de l'émission spontanée, la méthode la plus courante consiste à réaliser des mesures résolues en temps, qui permettent de remonter à la dynamique du système. Cependant, dans le cas de systèmes pour lesquel le temps de déclin est rapide, ce type de mesures n'est pas toujours approprié et des méthodes alternatives sous excitation continue sont souvent employées pour estimer cette valeur. Cependant jusqu'à présent, aucune comparaison entre ces différentes méthodes n'avait été proposée.

Nous présentons donc ici des approches variées pour quantifier l'exaltation d'un émetteur, et évaluons leur convergence ainsi que leur précision. Les points fort et les faiblesses de chacune de ces approches sont analysés, et devraient permettre à l'expérimentateur souhaitant réaliser une mesure du facteur de Purcell de définir la stratégie la plus adaptée en fonction de son système et du dispositif expérimental dont il dispose. Nous montrons enfin que l'interprétation des résultats en régime impulsionnel doit faire l'objet d'une attention particulière et développons un modèle original permettant d'expliquer nos résultats. L'ensemble de ce travail illustre la nécessité de prendre en compte la spécificité des boîtes quantiques dans une expérience d'électrodynamique quantique en cavité solide.

### Organisation du mémoire

Dans une première partie nous présentons les ingrédients nécessaires à une expérience d'électrodynamique quantique en cavité à partir de systèmes solides semiconducteurs. Nous rappelerons tout d'abord les principaux résultats théoriques de l'EDQC (notions de couplage faible et couplage fort), puis nous présenterons les deux constituants du système, à savoir le système à deux niveaux et la cavité.

Dans le deuxième chapitre, on décrit le dispositif expérimental ainsi que les expériences à partir desquelles les échantillons sont caractérisés. Nous montrerons comment identifier les différents éléments d'un spectre de micro-photoluminescence et mesurer les constantes du problème.

Les chapitres trois et quatre sont consacrés à la mesure du facteur de Purcell. Dans le chapitre trois, nous verrons comment l'effet Purcell se manifeste lors d'une expérience sous excitation continue, et comment il est possible de le quantifier de plusieurs manières différentes. Dans le chapitre quatre, nous présenterons les résultats d'une expérience résolue en temps et montrerons qu'une description plus fine de la boîte quantique est nécessaire pour interpréter nos observations. Ces méthodes seront comparées entre elles et leur pertinence sera évaluée en fonction du système d'étude.

Le cinquième chapitre est consacré à l'étude d'une application potentielle de ces systèmes pour réaliser une non-linéarité optique géante. Nous présenterons les travaux en cours ainsi que les résultats attendus.

# Chapitre 2

# Ingrédients d'EDQC en physique du solide

## Contents


**2.1 Rappels d'électrodynamique quantique en cavité . . . . . 10**

2.1.1 Avant-propos . . . . . 10

2.1.2 Couplage faible . . . . . 11

2.1.3 Régime de couplage fort . . . . . 15

**2.2 La boîte quantique, un atome artificiel . . . . . 16**

2.2.1 Semi-conducteurs et nanostructures . . . . . 17

2.2.2 Croissance des boîtes quantiques . . . . . 19

2.2.3 Photoluminescence des boîtes quantiques . . . . . 21

**2.3 Microcavités optiques . . . . . 23**

2.3.1 Rappels sur les cavités planaires . . . . . 23

2.3.2 Modification du taux d'émission dans les cavités planaires - Vers une réduction de la dimensionnalité . . . . . 25

2.3.3 Cristaux photoniques . . . . . 27

2.3.4 Micropiliers . . . . . 28


Les expériences présentées dans ce mémoire ont été réalisées sur des boîtes quantiques insérées dans des microcavités solides semiconductrices. L'objectif de cette partie est donc de montrer dans quelle mesure ce système peut être assimilé au cas idéal de l'atome à deux niveaux couplé à une cavité monomode. Dans un premier temps, nous rappellerons les résultats fondamentaux de l'EDQC obtenus à partir du système idéal. Dans une seconde partie nous montrerons en quoi les boîtes quantiques peuvent être assimilées à des atomes artificiels et dans une troisième partie nous présenterons les cavités sur lesquelles nous avons plus particulièrement travaillé.

## 2.1 Rappels d'électrodynamique quantique en cavité

### 2.1.1 Avant-propos

L'émission spontanée de photons est le produit de la désexcitation naturelle d'un système atomique initialement préparé dans un état excité, et résulte de son couplage à un continuum d'états extérieur. Ce phénomène est décrit par la règle d'or de Fermi, qui donne la probabilité de transition, encore appelée *taux d'émission spontanée*, entre un état excité à zero photon $|e,0\rangle$, et un état fondamental à un photon $|f,1\rangle$

$$\Gamma(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} \left|\langle e,0|H_{int}|f,1\rangle\right|^2 \rho(\omega) \tag{2.1}$$

Dans le cadre de l'approximation dipolaire, le Hamiltonien d'interaction entre le champ $\mathbf{E}$ le dipole atomique $\mathbf{d}$, prend la forme $H_{int} = -\mathbf{d}.\mathbf{E}$, tandis que, dans l'espace libre, la densité d'état $\rho(\omega)$ est donnée par

$$\rho_{libre}(\omega) = \frac{\omega^2 n^3}{\pi^2 c^3} \tag{2.2}$$

où $n$ est l'indice du milieu et $c$ la vitesse de la lumière. Pour un dipole aligné avec le champ, oscillant à la pulsation $\omega_0$, on obtient alors l'expression du taux d'émission spontanée de l'émetteur dans le vide

$$\Gamma_{libre} = \frac{\omega_0^3 d^2}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3} \tag{2.3}$$

où $d^2 = |\langle e|\mathbf{d}|f\rangle|^2$ et $\epsilon_0$ est la permittivité diélectrique du vide. L'équation 2.3 montre que le taux d'émission dans le vide dépend de la taille du dipôle (plus il est grand, plus le taux d'émission est grand) et de la fréquence de pulsation $\omega_0$, autrement dit de la longueur d'onde d'émission. Ainsi, à taille de dipole équivalente, le taux d'émission d'un émetteur dans l'ultraviolet est supérieur à celui d'un émetteur dans l'infrarouge.

Nous allons voir qu'en modifiant la densité de modes du champ électromagnétique, la cavité a pour effet de modifier les propriétés d'émission d'un atome, résultat déjà obtenu par Purcell dès le milieu de siècle dernier [1].

Le système global peut être décrit comme illustré à la figure 2.1 par le couplage entre trois sous systèmes : un atome, dont on ne considère qu'une transition, un mode confiné de la cavité et le continuum des modes exterieurs à la cavité. L'atome et le mode sont couplés par la constante $g$, tandis que le mode est couplé au continuum par la constante $\kappa$. On distingue alors deux régimes selon que $g$ est plus grand ou plus petit que $\kappa$. Dans le premier cas ($g \gg \kappa$), le système se décrit en calculant les états propres du système atome-cavité et le continuum des modes extérieurs est traité comme une perturbation. On parle alors de couplage fort et une description adaptée se fait dans le formalisme de l'atome habillé par le champ à partir du Hamiltonien de Jaynes et Cummings. Dans le second cas ($g \ll \kappa$), le couplage entre le mode confiné et le continuum extérieur est cette fois prépondérant. On détermine alors les états propres du système cavité/réservoir avant de décrire l'interaction entre l'atome et le quasi-mode ainsi formé. Ce régime est celui du couplage faible, encore appelé régime de Purcell. On se propose maintenant de dériver une valeur du facteur de Purcell à partir de la description du couplage faible dans le formalisme des quasi-modes, avant d'évoquer brièvement le couplage fort.

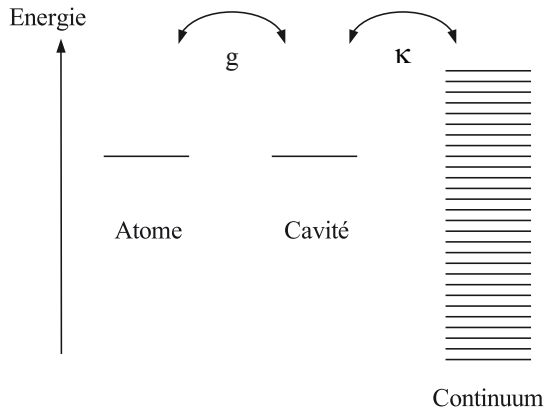


FIGURE 2.1 – Schéma du couplage entre l'atome, la cavité et le continuum des modes extérieurs.

### 2.1.2 Couplage faible

Dans le régime de couplage faible ($g \ll \kappa$), un photon émis dans la cavité se couple facilement aux modes propagatifs du réservoir. Cela revient à dire que le photon s'échappe facilement de la cavité, ou que la cavité fuit. Pour quantifier cette perte, on introduit le *facteur de qualité* $Q$ d'un mode, qui représente sa capacité à stocker l'énergie, ou encore le nombre d'aller-retour que peut faire un photon avant d'être perdu. Comme pour tout résonateur, ce facteur est définit de la manière suivante :

$$Q = \frac{2\pi(\textit{Energie stockée dans le mode})}{\textit{Energie dissipée par cycle}} \tag{2.4}$$

Le calcul de l'énergie dissipée au bout d'une période donne $\frac{2\pi}{\omega}\Delta\omega E_{\text{stockée}}$ [51], où $\frac{1}{\Delta\omega} = \tau_p$ correspond au temps de vie d'un photon dans la cavité, d'où finalement

$$Q = \frac{\omega}{\Delta\omega} \tag{2.5}$$

On retrouve bien que le facteur de qualité est d'autant plus grand que $\tau_p$ est grand. Spectralement, une cavité sans pertes est parfaitement monochromatique ($\Delta\omega \to 0$), tandis que le temps de vie limité du photon dans la cavité conduit à un élargissement de la raie associée au mode confiné.

On décrit alors le couplage d'un mode discret à un continuum dans le formalisme de Fano [52], où la densité d'états peut être exprimée en fonction de $Q$ et de la fréquence propre du mode confiné $\omega_0$

$$\rho(\omega) = \frac{2Q}{\pi\hbar\omega_0}\frac{1}{1 + 4Q^2\left(\frac{\omega-\omega_0}{\omega_0}\right)^2} \tag{2.6}$$

L'émetteur n'est donc plus couplé à un mode infiniment fin, mais à un continuum dont la densité de mode est définie par une lorentzienne de largeur à mi hauteur $\Delta\omega = \omega_0/Q$, on parle

de *quasi-mode* (cf figure 2.2). Sa dépendance spatiale, en revanche, reste la même que celle du mode confiné. On peut donc définir son volume, appelé *volume modal* ou encore *volume effectif*, qui correspond au volume qu'occuperait le champ s'il était uniformément réparti et égal à sa valeur maximale

$$V_{eff} = \frac{\iiint |n(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 d^3\mathbf{r}}{|n(\mathbf{r})\mathbf{E}_{max}(\mathbf{r})|^2} \tag{2.7}$$

où $\mathbf{r}$ est un vecteur associé aux coordonées spatiales et $n(\mathbf{r})$ est l'indice optique du milieu. On peut alors exprimer l'opérateur du champ pour le quasi-mode en fonction du volume effectif $V_{eff}$, de la fonction spatiale $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ du quasi-mode, qui détermine l'amplitude et la polarisation du champ en $\mathbf{r}$, et des opérateurs création et annihilation d'un photon dans le quasi-mode (respectivement $a^\dagger$ et $a$)

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V_{eff}}}\left(a\mathbf{f}^*(\mathbf{r}) + a^\dagger\mathbf{f}(\mathbf{r})\right) \tag{2.8}$$

Le taux d'émission spontanée dans le quasi-mode se déduit de l'équation 2.1 pour un émetteur résonnant et dont le dipole est aligné avec le champ

$$\Gamma = \frac{2d^2Q}{\hbar\epsilon_0 V_{eff}} \tag{2.9}$$

On introduit enfin le facteur de Purcell $F_p$, défini par le rapport entre les taux d'émission d'un même émetteur en cavité et dans le vide

$$F_p = \Gamma/\Gamma_0 \tag{2.10}$$

dont on détermine l'expression, à partir des équations 2.3 et 2.9

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2}\frac{Q\lambda^3}{V_{eff}} \tag{2.11}$$

L'équation 2.11 montre que le facteur de Purcell dépend essentiellement de deux paramètres associés à la cavité : son volume modal $V_{eff}$, qui traduit le degré de confinement spatial du quasi-mode, et son facteur de qualité $Q$, qui mesure le confinement temporel à l'intérieur de la cavité.

### Facteur de Purcell effectif

L'équation 2.11 est obtenu dans le cas d'un émetteur idéal, parfaitement couplé au mode de cavité. Dans la pratique, le système que nous étudions diverge du cas idéal par plusieurs aspects. On se propose donc ici de revenir sur les hypothèses qui conduisent à ce résultat afin d'en déterminer les limites. Nous introduirons finalement le facteur de Purcell effectif $F$, que nous utiliserons dans la suite de ce manuscrit, et qui tient compte du couplage réel entre l'atome et la cavité.

Tout d'abord, pour calculer le Hamiltonien d'interaction, on suppose l'émetteur ponctuel, et situé à un ventre du mode confiné. Comme nous le verrons par la suite, la taille moyenne des

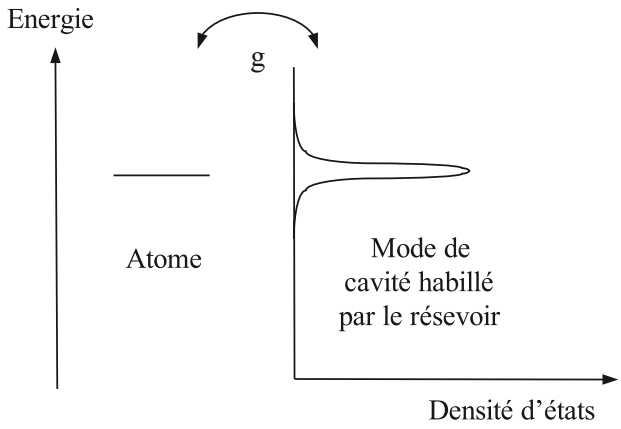


FIGURE 2.2 – Schéma du couplage entre l'atome et le quasi-mode issu du formalisme de Fano.

boîtes quantiques est suffisamment petite à l'échelle de l'extension du mode pour considérer que cette première hypothèse est raisonnable. En revanche, nous montrerons que, dans notre cas, nous ne maîtrisons pas la position spatiale de notre émetteur dans la cavité. On corrige la valeur du taux d'émission en introduisant le facteur $\frac{n(\mathbf{r})|\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2}{n_{max}|\mathbf{E}_{max}(\mathbf{r})|^2}$ qui décrit la diminution de la valeur du couplage dipolaire pour un émetteur situé à une distance $|\mathbf{r}|$ du ventre du mode.

La seconde hypothèse concerne l'orientation du dipole, que nous avons supposé parallèle au champ. En ce qui concerne les boîtes quantiques que nous avons étudiées, leur dipole est orienté dans le plan perpendiculaire à l'axe de croissance, où le confinement des charges est moins important (voir partie 2.2.2). Dans ce plan, des anisotropies de forme peuvent apparaître, résultant d'une relaxation non homogène des contraintes et donnant à l'émission une direction de polarisation privilégiée [53]. Cette anistropie est accompagnée d'une levée de dégénérescence des états correspondant à chacune de ces polarisations, d'autant plus prononcée que l'anistropie de forme est marquée, et qui peut atteindre plusieurs centaines de $\mu$eV [53, 54, 55]. Les spectres présentés dans les chapitres suivants ne permettent pas de résoudre la structure fine de la raie d'émission pour la boîte quantique d'intérêt en dépit d'une très bonne résolution spectrale, ce qui suggère une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance. Toutefois, il a été montré, que même dans le cas de boîtes cylindriques, les symétries atomiques du cristal peuvent donner naissance à une émission polarisée [56]. Dans ce cas, la levée de dégénerescence attendue est moins marquée. Les mesures que nous avons réalisées ne permettent donc pas d'établir de manière certaine s'il existe une direction de polarisation privilégiée dans le cas de nos boîtes quantiques.

Cependant, le champ soutenu par le mode guidé du micropilier se propage le long de l'axe vertical, qui correspond à l'axe de croissance de la boîte quantique. Le champ $\mathbf{E}$ est donc dans le même plan que le dipole. D'autre part, l'absence de levée de dégénérescence en polarisation constatée sur le profil spectral de la cavité (voir figure 3.7 par exemple) indique que la section

des piliers est circulaire. En effet, les résultats obtenus dans [57] montrent que, pour un pilier de diamètre comparable à celui étudié ($< 2$ $\mu$m), une ellipticité de seulement 5% se traduit par une levée de dégénérescence de l'ordre de 500 $\mu$eV, soit environ 50 fois la résolution de notre montage. Finalement, dans notre cas, ce sont donc les règles de selections qui imposent que les photons émis dans le mode de la cavité portent la polarisation du dipole.

La troisième hypothèse concerne l'accord spectral entre l'atome et le mode de cavité. Nous verrons qu'expérimentalement il est possible de contrôler la position (spectrale) relative de la boîte quantique par rapport à la cavité. Cette hypothèse peut donc être satisfaite et, pour les situations où l'accord n'est pas réalisé, on réévalue la densité de mode à partir de l'équation 2.6 et l'on introduit le facteur correctif $\rho(\omega)/\rho(\omega_0)$ dans l'expression du taux d'émission, avec $E$ l'énergie de la boîte quantique.

Enfin, la transition atomique est supposée infiniment fine devant la largeur du mode, il s'agit de la condition de quasi monochromaticité. Dans la réalité, une transition atomique présente toujours une certaine largeur homogène associée à son couplage à l'environnement. Dans le cas de la physique atomique, l'élargissement homogène, associé au chocs entre atomes, peut être limité dans les conditions de température et de pression adéquates. En physique du solide, au contraire, la largeur homogène associée à une transition peut être significative (par rapport à celle de la cavité). En effet, vibrations du réseau et mouvements de charges sont autant de sources potentielles de décohérence, qui conduisent à un élargissement de la raie observée. On prend alors en compte cette largeur homogène au moyen d'un facteur de qualité atomique $Q_{at}$, et l'on définit une expression plus générale du facteur de qualité effectif de l'ensemble [58].

$$\frac{1}{Q_{eff}} = \frac{1}{Q} + \frac{1}{Q_{at}} \tag{2.12}$$

La conséquence de l'élargissement de l'émetteur est donc une diminution du facteur de qualité effectif, qui se traduit par une diminution de l'exaltation du taux d'émission. On notera ici qu'il ne faut pas prendre en compte le couplage au champ électromagnétique de la cavité, qui génère un élargissement naturel associé au taux d'émission. En d'autres termes, $Q_{at}$ correspond au déphasage pur subit par l'atome.

En définitive, l'expression en 2.11 correspond à la valeur maximale du facteur de Purcell qui peut être atteinte pour une cavité donnée. En ce sens, le facteur de Purcell constitue une figure de mérite, qui permet d'évaluer et de comparer les performances des cavités. En revanche, pour une même cavité, le taux d'exaltation de l'émission spontanée peut varier d'un émetteur à l'autre, en fonction de son couplage avec le mode de cavité. Pour un émetteur donné le taux d'exaltation s'écrit alors

$$\frac{\Gamma(E)}{\Gamma_0} = F_p \frac{n(\mathbf{r})|\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2}{n_{max}|\mathbf{E}_{max}(\mathbf{r})|^2} \frac{\rho(\omega)}{\rho(\omega_0)} \frac{Q_{eff}}{Q} \tag{2.13}$$

Dans la suite, nous désignerons par *facteur de Purcell effectif* $F$, le taux d'exaltation de l'émission spontanée pour un émetteur donné prenant en compte son couplage spatial ainsi que sa largeur homogène et défini comme suit :

$$\frac{\Gamma(\omega)}{\Gamma_0} = F\frac{\rho(\omega)}{\rho(\omega_0)} \tag{2.14}$$

### 2.1.3 Régime de couplage fort

Lorsqu'au contraire le couplage entre l'atome et la cavité est largement supérieur au couplage entre la cavité et le continuum du monde extérieur ($g \gg \gamma$), il convient de traiter l'interaction atome-champ en premier, et d'introduire le continuum du réservoir sous la forme de pertes par rapport au système isolé idéal. On est dans le régime du *couplage fort*. Le formalisme le plus adapté est alors celui dérivant du modèle de Jaynes et Cummings [7], où à la fois l'atome et le champ sont quantifiés. Dans ce contexte, le Hamiltonien global du système atome-champ couplé s'écrit

$$\mathcal{H} = \hbar\nu a^\dagger a + \frac{1}{2}\hbar\omega\sigma_z + \hbar g(\sigma_+ a + a^\dagger\sigma_-) \tag{2.15}$$

où les deux premiers termes correspondent respectivement aux Hamiltoniens du champ et de l'atome, tandis que le troisième résulte de leur interaction. On peut notamment repérer les termes $\sigma_+ a$ et $\sigma_- a^\dagger$ qui décrivent respectivement le passage du système atomique de l'état fondamental vers l'état excité provoqué par l'absorption d'un photon, et l'émission d'un photon lors de la désexcitation de l'atome. Lorsqu'atome et cavité sont résonnants, le calcul des états propres de ce système conduit à l'apparition d'un doublet en énergie séparé d'une énergie $2g$, qui correspond aux états de l'atome habillé par la cavité (cf figure 2.3).

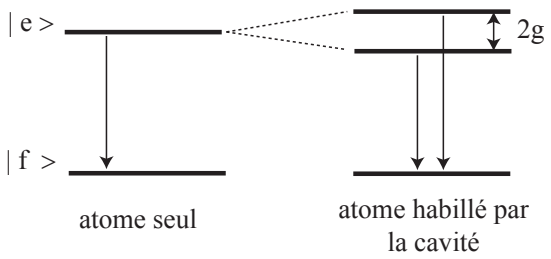


FIGURE 2.3 – Splitting de Rabi dû au couplage résonnant de l'atome et de la cavité.

Parallèlement, on observe un phénomène d'oscillations au cours desquelles le système atomique échange son énergie de manière cohérente et réversible avec la cavité. Concrètement le photon est émis dans la cavité, puis absorbé à nouveau, avant d'être réémis et ainsi de suite. Ce phénomène, connu sous le nom d'oscillations de Rabi, est la conséquence directe du couplage fort entre l'atome et la cavité. Ce battement quantique entre les deux états du système est illustré à la figure 2.4. Finalement, l'introduction de pertes $\gamma$ liées aux fuites vers le continuum extérieur se traduit par un amortissement plus ou moins rapide de ces oscillations. Le rapport entre $g$ et $\gamma$ détermine alors le nombre de cycles qui peuvent être réalisés.

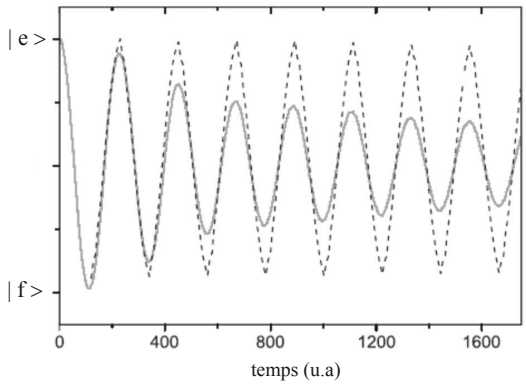


FIGURE 2.4 – Oscillations de Rabi dans le cas idéal (trait pointillé) et amorti (trait plein)

Dans la pratique, l'obtention du couplage fort est donc conditionnée par les critères suivants. D'une part le facteur de qualité doit être aussi grand que possible afin que le photon reste le plus longtemps possible dans la cavité. D'autre part, il faut maximiser la section efficace entre l'émetteur et le champ, ce qui s'obtient en augmentant le confinement du champ. On retrouve donc les paramètres qui interviennent dans l'expression du facteur de Purcell établie l'équation 2.11, mais peut- on encore véritablement parler de facteur de Purcell dans ce régime ? D'un point de vue formel, on peut montrer qu'il est toujours possible de le définir à partir des valeurs de $g$, $\gamma$ et $\kappa = 1/\tau_p$ d'après la relation suivante

$$F_p = \frac{4g^2}{\kappa\gamma} \tag{2.16}$$

Le couplage fort correspond alors à des très grands facteurs de Purcell. Du point de vue de la définition cependant, la situation est plus confuse. En effet, comme nous l'avons vu, le facteur de Purcell quantifie l'exaltation de l'émission spontanée d'un émetteur. Or dans le régime du couplage fort, cette donnée n'est plus accessible à la mesure, puisque le photon est absorbé et ré-émis plusieurs fois avant de s'échapper de la cavité. Le facteur de Purcell cesse donc d'être la figure de mérite pertinente et on utilisera plutôt la valeur du couplage $g$ pour qualifier ce régime.

Après ces quelques rappels généraux, nous allons maintenant voir comment il est possible de réaliser des expériences d'électrodynamique quantique en cavité à partir d'émetteurs et de cavités solides. En particulier, nous allons montrer que les boîtes quantiques et les microcavités semi-conductrices constituent des candidats intéressants.

## 2.2 La boîte quantique, un atome artificiel

Agrégats concentrant des milliers d'atomes, les boîtes quantiques ne se comportent pas moins comme des atomes artificiels et, à ce titre, ont suscité beaucoup d'intérêt depuis leur découverte dans les années 80 [59]. On se propose dans cette section de rappeler ce qu'est une

boîte quantique ainsi que la méthode par laquelle on les fabrique, et de présenter leur réponse à une excitation optique.

### 2.2.1 Semi-conducteurs et nanostructures

Autour d'un atome, les électrons se répartissent sur un ensemble de niveaux d'énergie discret. Dans le cas où deux atomes identiques sont couplés, l'hybridation de leurs orbitales conduit à une levée de dégénérescence de leurs états et à l'apparition de niveaux énergétiques supplémentaires. Dans un cristal, le très grand nombre d'atomes présents génère des bandes d'énergies complètes, séparées par des zones interdites. Les électrons se répartissent alors dans ces continua en suivant la statistique de Fermi. Deux bandes jouent un rôle particulier : la dernière entièrement occupée, que l'on désigne sous le nom de bande de valence, et celle qui la suit immédiatement, la bande de conduction. Ces deux bandes sont séparés par une énergie, définie à température nulle, et que l'on appelle énergie du gap (ou simplement gap). La figure 2.5 montre un exemple de diagramme de bande sur un cristal de GaAs.

On peut alors définir trois classes de matériaux. Si la bande de conduction est partiellement occupée, le matériau est dit conducteur. Les électrons de ces niveaux occupent des états délocalisés et peuvent se déplacer dans le cristal, participant ainsi aux phénomènes de conduction. Si au contraire la bande de conduction est vide, et que le gap est important, le matériau est dit isolant. Les électrons sont confinés dans les états localisés du cristal, qui assurent sa cohésion. Enfin, il existe une classe de matériaux, dont la bande de conduction est vide à 0K, qui a donc les caractéristiques d'un isolant, mais pour lequel la probabilité qu'un électron participe aux phénomènes de conduction, quoi que faible, est suffisamment importante. En d'autres termes il est possible, pour cette classe de matériaux, de promouvoir des électrons depuis la bande de valence vers la bande de conduction au moyen d'une excitation appropriée (ou dans certains cas en élevant la température). On parle dans ce cas de matériaux semi-conducteurs.

Les matériaux semi-conducteurs peuvent être divisés en deux classes, selon qu'il sont à gaps direct ou indirect. Le cas qui nous intéresse est celui des gaps directs, pour lesquels les bandes de valence et de conduction présentent respectivement un maximum et un minimum en un même point de la zone de Brillouin (le plus souvent au centre, ie au point $\Gamma$ sur la figure 2.5). On ouvre ainsi un nouveau canal aux électrons de la bande de conduction, qui peuvent, en $\mathbf{k} = 0$, se désexciter vers la bande de valence en émettant un photon à l'énergie du gap.

Ce type de propriétés a généré quantité d'applications dans le domaine de l'opto-électronique, qu'il serait trop long de répertorier ici. En revanche, nous allons nous intéresser aux conséquences de l'abaissement de la dimensionnalité de ces systèmes, qui a conduit à tout un ensemble de nanostructures aux caractéristiques remarquables, dont celles qui nous intéressent plus particulièrement : les boîtes quantiques.

Dans le matériau massif (ou 3D) la densité d'états au voisinage de $\mathbf{k} = 0$ (point $\Gamma$) forme un continuum que l'on peut approximer par une parabole et dont la courbure est donné par

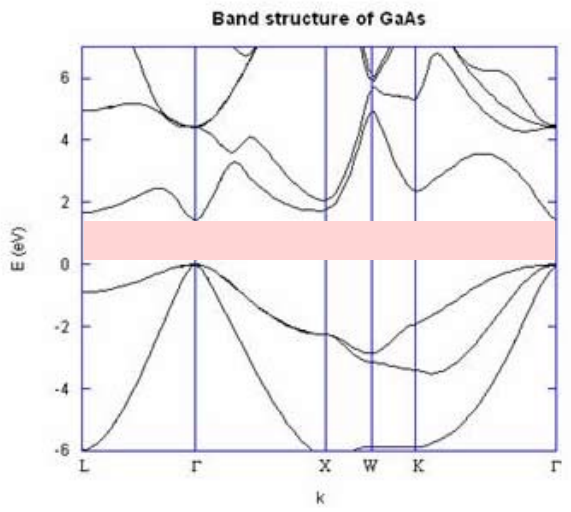


FIGURE 2.5 – Diagramme de bande du GaAs. Le gap est repéré en rouge clair.

la masse effective. Lorsque l'on passe à des structures de dimensionalités réduites, les nombres quantiques sont progressivement quantifiés dans la direction du confinement et l'on aboutit, dans le cas 0D, à un système dont le spectre de densité d'états est entièrement discretisé : c'est la boîte quantique, aussi désignée sous le nom d'*atome artificiel* (cf figure 2.6). Comme nous allons le voir, dans la pratique, ce confinement est obtenu en réalisant une inclusion nanométrique d'un semi-conducteur de petit gap, dans une matrice de semi-conducteur de plus grand gap. Dans une telle hétérostructure la différence de gap entre les deux matériaux forme alors un puit de potentiel qui piège les porteurs. Nous nous intéresserons dans cette thèse à des boîtes InAs dans GaAs, obtenues à partir de semi-conducteurs des colonnes III et V de la classification de Mendeleiev.

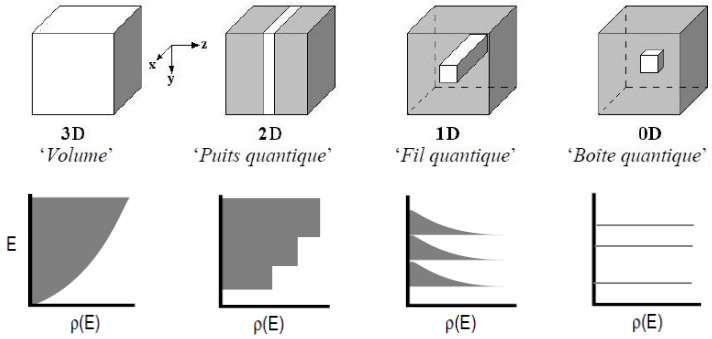


FIGURE 2.6 – Densité d'états en fonction du confinement spatial.

### 2.2.2 Croissance des boîtes quantiques

La fabrication des boîtes quantiques est réalisée par croissance épitaxiale auto-organisée (méthode dite de Stranski-Krastanov). L'idée consiste à faire croître une hétérostructure à partir de deux matériaux semi-conducteurs de gaps différents présentant une légère différence de paramètre de maille. Dans notre cas, il s'agit d'InAs déposé sur du GaAs (cf valeurs de gap et de paramètre de maille indiquées dans le tableau 2.1). Au cours de la déposition, on observe tout d'abord la formation d'une mono-couche d'InAs, qui absorbe la déformation liée à cette différence. La relaxation se fait alors de manière plastique par la formation de dislocations. Lorsque l'on dépasse une certaine épaisseur critique d'environ 2 mono-couches, des îlots tridimensionnels apparaissent, qui permettent de relaxer l'énergie élastique emmagasinée [59]. Leur dimensions dépendent de la quantité de matière déposée et se situent typiquement autour de 20nm de diamètre pour une hauteur de 5nm dans le cas d'InAs/GaAs. On encapsule ensuite ces îlots sous une nouvelle couche de GaAs et l'on obtient ainsi les inclusions capables de confiner les électrons sur des distances nanométriques.

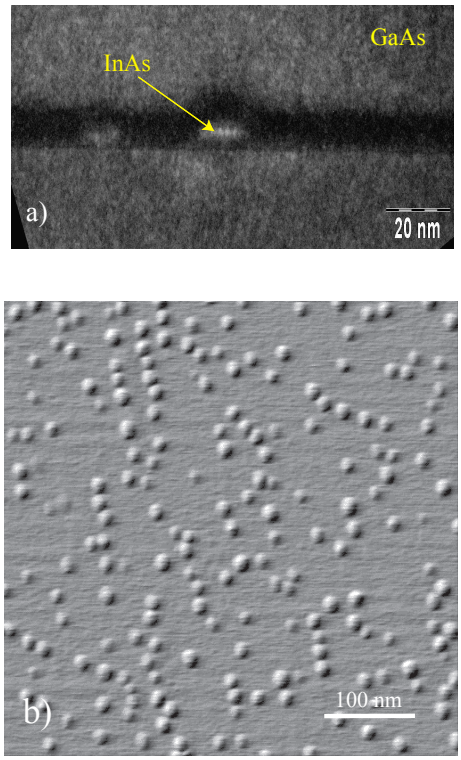


FIGURE 2.7 – a) Vue transverse d'une boîte quantique réalisée par microscope électronique en transmission (TEM). b) Image d'un plan de boîtes obtenue par microscope à force atomique (AFM).

L'image obtenue par microscopie à force atomique (fig 2.7b) montre qu'avec cette méthode de croissance spontanée on obtient des d'îlots de tailles variables répartis aléatoirement à la surface de l'échantillon. En jouant sur les paramètres de croissance, il est toutefois possible de contrôler leur taille moyenne et leur forme générale, de réduire la dispersion en taille jus-

qu'à moins de 10% ou encore de modifier leur densité surfacique (typiquement de l'ordre de quelques $10^{10}$ boites par $cm^2$) [60, 61]. Il est donc envisageable d'obtenir une boîte quantique aux propriétés attendues en sondant un nombre raisonnable de candidats, malgré le caractère aléatoire de la méthode de croissance.

Enfin, on constate qu'une fine couche d'InAs subsiste (cf fig 2.7a), appelée couche de mouillage, qui forme un puit de potentiel sous les boîtes quantiques dans lequel les charges peuvent se déplacer latéralement. Nous négligerons l'influence de cette couche dans notre modèle, approximation largement répandue, et qui conduit à des résultats tout à fait satisfaisants dans notre cas. J'insiste cependant sur le fait que cette couche de mouillage constitue un réservoir d'électrons répartis sur un continuum d'états dont l'influence sur l'émission des boîtes quantiques n'est de loin pas toujours négligeable. On pourra consulter [62] ou [63] pour deux illustrations très différentes.

| | InAs | GaAs |
|---|---|---|
| colonne du tableau périodique | III | V |
| structure cristalline | Zinc blende | Zinc blende |
| paramètre de maille (Å) | 6.0583 | 5.65325 |
| énergie du gap à $4K$ (eV) | 0.415 | 1.53 |
| indice de réfraction | 3.51 | 3.25 |

TABLE 2.1 – Quelques caractéristiques concernant les semi-conducteurs InAs et GaAs

Nos boîtes sont alors recuites afin d'optimiser leur émission en longueur d'onde (nous verrons dans quel contexte au chapitre suivant). L'étape de recuit consiste à chauffer le matériau à une température élevée (typiquement entre 800 et 900°$C$ contre environ 520°$C$ pendant la phase de croissance) pendant une durée déterminée. On observe alors un phénomène d'interdiffusion entre les atomes d'indium de la boîte quantique et les atomes de galium de la matrice environnante, qui modifie les propriétés des boîtes quantiques (voir figure 2.8). L'effet le plus évident est un décalage spectral des raies d'émission vers le bleu [64, 65] associé à la présence de Ga dans les boîtes, qui modifie la taille du gap. Ce décalage peut être aussi grand que plusieurs centaines de $meV$. On observe également un homogénéisation de la taille des boîtes qui conduit à une réduction de la largeur de la raie inhomogène [65] ainsi qu'un élargissement de la raie homogène d'une boîte individuelle [66]. Plus récemment, l'utilisation de cette technique a été suggérée pour contrôler la structure fine des boîtes quantiques [67] avec dans l'idée la génération de paires de photons intriquées [68].

On peut finalement représenter notre système comme indiqué sur le schéma 2.9. L'inclusion d'InGaAs constitue un puits de potentiel à l'intérieur duquel les porteurs occupent des niveaux d'énergie discrets, tandis que, dans la matrice de GaAs environnante, la densité d'état forme un continuum. Les énergies de la couche de mouillage (WL) et des état s correspondent aux valeurs typiques mais ne sont données qu'à titre indicatif puisqu'elles dépendent du recuit. Les

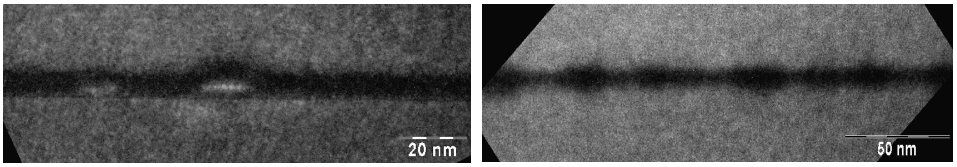


FIGURE 2.8 – Image TEM des boîtes quantiques avant (à gauche) et après (à droite) recuit. L'importance des phénomènes de diffusion est illustré par le "déplacement" des boîtes quantiques qui se situent, après recuit, de part et d'autre de la couche de mouillage.

séparations intrabandes entre les états s et p sont de l'ordre de $50meV$ dans le cas des électrons et $15meV$ pour les trous [51].

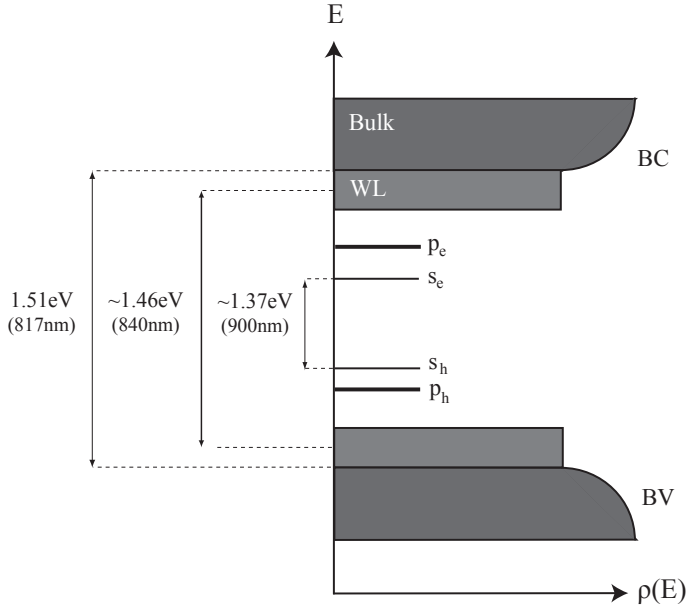


FIGURE 2.9 – Schéma des niveaux d'énergie pour une boîte quantique InAs/GaAs. BC et BV désignent respectivement les bandes de conduction et de valence, le bulk représente la matrice de GaAs et WL la couche de mouillage (Wetting Layer en anglais)

### 2.2.3 Photoluminescence des boîtes quantiques

La photoluminescence (PL) est un outil d'investigation des propriétés optiques d'un matériau semiconducteur. L'idée est d'observer la réponse radiative d'un matériau soumis à une excitation lumineuse. Concrètement, on déplace un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, au moyen d'une excitation optique à une énergie supérieure à celle du gap. D'un point de vue formel, il est tout à fait équivalent de considérer que l'on *crée* un électron dans la bande de conduction et un trou, particule identique mais de signe opposé,

dans la bande de valence. On appelle *exciton* le complexe formé par cette paire électron-trou. Les excitons créés sont délocalisés et peuvent se déplacer au sein du cristal. Au cours de leur propagation ils échangent, via des chocs élastiques, de l'énergie avec les phonons du réseaux, relaxant ainsi vers le centre de bande à partir duquel ils peuvent se recombiner en émettant un photon à l'énergie du gap. L'étude spectrale et dynamique de ces photons donne alors de nombreuses informations qui permettent de remonter aux propriétés du matériau lui-même.

Ce principe est représenté à la figure 2.10 sur la cas particulier d'une boîte quantique. En général, l'excitation est le plus souvent faite au delà des barrières, c'est à dire à une énergie supérieure à celle du gap le plus grand (GaAs dans notre cas) [1]. Lorsque les électrons et trous rencontrent une boîte quantique, ils sont piégés par le puits de potentiel et relaxent vers les niveaux de la boîte en échangeant l'énergie excédentaire avec des phonons du réseau ou par recombinaison Auger avec des électrons de la matrice environnante. On obtient finalement une paire électron-trou (un exciton) au sein de la boîte quantique, qui se recombine en émettant un photon après un temps caractéristique de la transition.

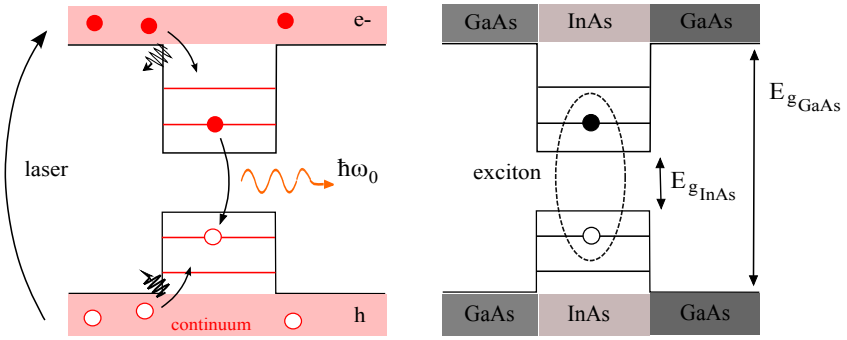


FIGURE 2.10 – Description schématique d'une expérience de photoluminescence réalisée sur une boîte quantique sous excitation non-résonnante.

Lorsque plusieurs paires électrons et trous sont injectées, elles se répartissent sur les niveaux discrets de la boîte en suivant le principe d'exclusion de Pauli. Nous nous limitons ici à la description de la luminescence associée au remplissage du premier niveau confiné, suffisante pour interpréter les résultats obtenus dans des gammes de puissances modérées, comme c'est le cas dans ce mémoire. Plusieurs possibilités doivent être envisagées, illustrées sur la figure 2.11, correspondant aux différents états de charge du niveau fondamental. Les deux premiers exemples sont les plus naturels, et correspondent au remplissage des niveaux par une ou deux paires électron-trou.

Dans le premier cas, un seul exciton occupe la boîte quantique et sa recombinaison génère un photon à la fréquence $\omega_X$. Dans le second cas, ce sont cette fois deux paires électron-trou qui occupent la boîte (on parle de *biexciton*). La recombinaison de l'un des excitons engendre

1. Dans notre en cas, nous excitons en réalité le système dans le continuum de la couche de mouillage, afin de minimiser l'absorption par les miroirs de Bragg (voir section 3.1.2). Le principe est cependant tout à fait similaire

alors l'émission d'un photon décalé en fréquence à cause de l'interaction coulombienne entre les deux excitons ($\omega_{XX} \neq \omega_X$). Cette énergie de liaison engendre donc un splitting dont la valeur varie d'une boîte à l'autre en fonction du degré de confinement des charges et peut aller jusqu'à plusieurs $meV$, voire plusieurs dizaine de $meV$ [69].

Les deux exemples suivants représentent les situations dans lesquelles un exciton est piégé dans la boîte quantique qui contient déjà une charge excédentaire (trou ou électron). Là encore, du fait de l'interaction entre les charges, on observe un décalage spectral de ces raies par rapport à l'exciton neutre [70, 71]. Ce type de situations est particulièrement courant dans les systèmes II-VI qui possèdent généralement un dopage résiduel plus important que dans les système III-V [72].

Enfin, de manière générale, le nombre de paires électrons-trous à l'intérieur d'une boîte dépend de deux paramètres : la puissance du laser de pompe et l'efficacité de relaxation des charges vers les niveaux de la boîtes, qui est supposée constante en première approximation. Nous reviendrons sur la validité de cette hypothèse au chapitre 5, mais en attendant, nous considérerons que seule l'intensité de la pompe influe sur le remplissage de la boîte, mécanisme qui sera traité plus en détails dans les chapitres 4 et 5.

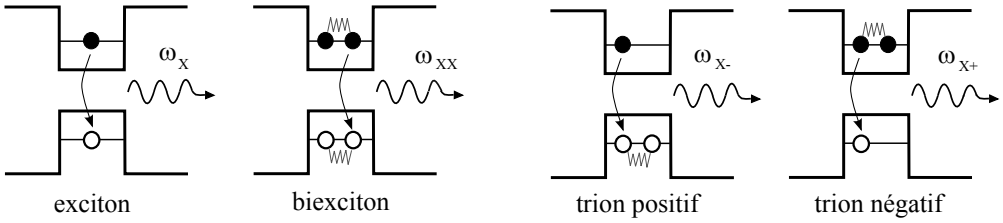


FIGURE 2.11 – Représentation des différents états de charges du niveau fondamental.

## 2.3 Microcavités optiques

De nombreuses approches ont été envisagées pour réaliser des microcavités tridimensionnelles dans des matériaux diélectriques. Parmi elles, on peut citer l'exemple des micropiliers, des cristaux photoniques et des microdisques, qui ont permis l'observation d'effets fondamentaux de l'électrodynamique quantique en cavité comme l'effet Purcell [28, 73, 74], ou le couplage fort [30, 31, 75]. Cette partie est donc consacrée à la description des principes qui conduisent au confinement optique dans ce type de structures. On portera notamment un regard plus précis sur le cas des micropiliers.

### 2.3.1 Rappels sur les cavités planaires

Une cavité planaire est un espace délimité par deux miroirs plans parallèles, couramment désigné sous le nom d'interféromètre de Fabry-Pérot. Lorsque l'on place un atome dont l'émission est a priori isotrope dans une structure de ce type, on observe que son diagramme de rayon-

nement est fortement modifié sous l'effet d'interférences constructives et destructives [76]. En effet, le champ transmis hors de la cavité est alors constitué d'une suite d'ondes présentant une différence de phase proportionnelle au nombre d'allers-retours effectués dans la cavité, et dont l'amplitude est diminuée à chaque réflexion (cf figure 2.12). On peut alors montrer que le flux de puissance émis dans une direction $\theta$ de l'espace s'écrit

$$\mathcal{I}(\theta) = \frac{1 + r^2 + 2r\cos\phi}{|1 + r^2 e^{-2i\phi}|} \tag{2.17}$$

où $r$ est le coefficient de reflexion des miroirs et $\phi$ est la différence de phase associée à un aller-retour dans la cavité, qui dépend de la distance entre les miroirs, de la longueur d'onde d'émission et de l'angle d'émission $\theta$. L'équation 2.17 montre que l'émission n'est plus isotrope mais constituée de franges brillantes et de franges sombres dont l'intensité varie en fonction de l'angle d'incidence $\theta$ selon la fonction d'Airy.

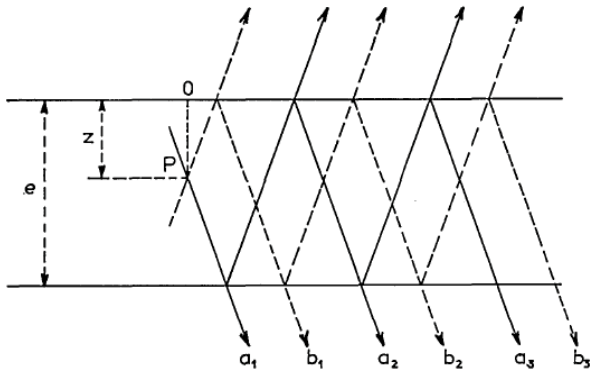


FIGURE 2.12 – Rayonnement d'une source ponctuelle P placée en cavité tel que représenté dans [76]. Le champ transmis résulte de l'interférence constructive ou destructive des rayons $a_i$ et $b_i$.

On définit alors les *modes Fabry-Pérot*, qui sont les modes résonnants de la cavité et qui concentrent l'énergie du champ. Ces modes sont obtenus à partir de la quantification du vecteur d'onde soit, à incidence nulle ($\theta = 0$), $k_z = \frac{m\pi}{L}$, et leur largeur spectrale dépend du coefficient de réflectivité du miroir. La cavité a donc pour effet de rediriger l'émission dans un angle solide de l'espace. Cette propriété, particulièrement intéressante du point de vue applicatif [2], ne doit pas être confondue avec l'exaltation du taux d'émission spontanée due à l'effet Purcell. L'effet décrit ici est purement interférentiel et en aucun cas la dynamique d'émission n'entre dans cette description ! Dans la suite, nous parlerons d'*effet géométrique* pour désigner les variations d'intensité associées aux modifications du diagramme de rayonnement de l'atome en cavité décrites ici.

2. Cette propriété est notamment exploitée pour canaliser l'émission d'une LED, ou pour diminuer l'effet de seuil dans un laser

Un point crucial pour la réalisation de bonnes cavités est évidemment le coefficient de réflexion des miroirs. Contrairement au domaine micro-onde, pour lequel on dispose de miroirs supra-conducteurs, il n'existe pas de miroirs métalliques sans pertes aux fréquences optiques. Les valeurs de réflectivité les plus grandes sont obtenues avec des métaux comme l'argent, l'or ou l'aluminium, et plafonnent autour de 95% (soit $Q \sim 60$). Dans la pratique, on utilise donc des miroirs de Bragg en matériaux diélectriques, qui permettent d'atteindre des valeurs de réflectivité beaucoup plus élevées ($> 99.9\%$).

Un miroir de Bragg (DBR pour Distributed Bragg Mirror) est constitué d'une alternance de couches diélectriques d'indices différents et repose sur le principe de la réflexion de Bragg distribuée. La réflectivité est obtenue par un effet d'interférences constructives entre les rayons réfléchis aux différentes interfaces. La condition de Bragg définit l'épaisseur des couches de chaque matériau pour une longueur d'onde donnée :

$$\frac{\lambda}{4} = n_1 l_1 = n_2 l_2 \tag{2.18}$$

où $n_i$ et $l_i$ sont l'indice de réfraction et l'épaisseur d'une couche du diélectrique $i$. Avec un empilement de couches suffisament grand, il est possible d'atteindre des valeurs de réflectivité nettement supérieures à celles des miroirs métalliques . Ce résultat n'est cependant valable que sur une plage de fréquences limitée, appelée stop-band du miroir, qui dépend de la différence d'indice entre les couches

$$\Delta\lambda = \frac{n_1 - n_2}{\pi(n_1 + n_2)} \tag{2.19}$$

Pour les miroirs que nous avons étudiés, la largeur de la stop-band est d'environ 100 $nm$ (voir fig. 2.13b). Enfin, ces miroirs ont également une acceptance angulaire limitée, d'environ 20° autour de la normale, associée à la stop bande. Au delà de cet angle, les modes se propagent dans les miroirs de Bragg vers l'extérieur de la cavité (on parle de modes de fuites), voire sont guidés dans le plan lorsque l'angle dépasse le seuil de reflexion totale interne à la première interface (cf fig. 2.13a). Dans la pratique, on mesure aujourd'hui des facteurs de qualité pour les cavités planaires à miroir de Bragg supérieurs à $10^5$ [77].

### 2.3.2 Modification du taux d'émission dans les cavités planaires - Vers une réduction de la dimensionnalité

L'étude de la modification du taux d'émission spontanée d'un émetteur dans une cavité planaire à miroirs réels (métalliques ou diélectriques) remonte au début des années 90 [78]. Pour répondre à cette question, il faut cette fois traiter le cas du couplage entre deux continua : le continuum de modes résonnants de la cavité et le continuum des modes de fuites. Ce cas dépasse le cadre du modèle présenté à la partie 2.1 qui se limite au couplage d'un mode unique à un continuum et ne sera pas traité plus en détail ici. On pourra se référer à [79] pour un aperçu complet de l'ensemble des travaux réalisés dans le domaine. On peut toutefois dégager les résultats suivants :

- dans le cas de miroirs métalliques, l'exaltation maximale attendue pour une cavité $\lambda/2$ est $\Gamma = 4.4\Gamma_0$, avec $\Gamma_0$ le taux d'émission spontanée dans le vide, tandis que l'inhibition maximale attendue est $\Gamma = 0.2\Gamma_0$ [80]

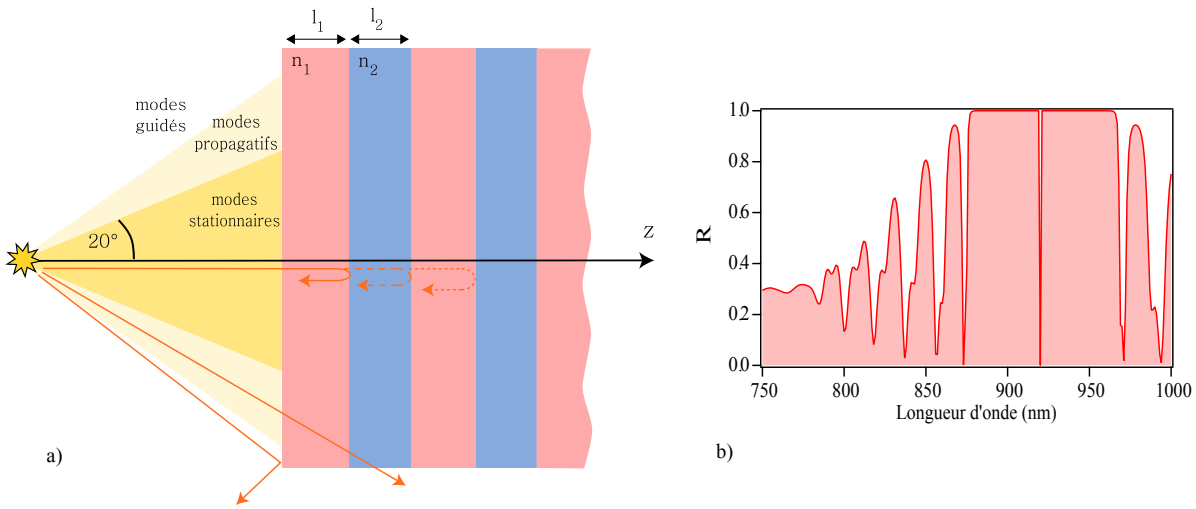


FIGURE 2.13 – a) Représentation schématique d'un miroir de Bragg. A chaque passage dans une couche d'indice différent du miroir, la fraction transmise est diminuée. En revanche, dans les conditions de Bragg, la fraction refléchie interfère constructivement. Le coefficient de reflexion du miroir global dépend donc du nombre de couches et peut atteindre des valeurs supérieures à 99.9%. b) Réflectivité théorique calculée dans le cas particulier de nos échantillons (voir chapitre 3.2) sous incidence normale et à 300 $K$.

– dans le cas de miroirs de Bragg GaAs/AlAs, l'exaltation maximale attendue est $\Gamma = 1.2\Gamma_0$ et l'inhibition maximimale attendue est $\Gamma = 0.8\Gamma_0$ [80]

La modification limitée du taux d'émission spontanée est ici due au fait que le mode n'est confiné que dans une seule direction de l'espace. On peut notamment montrer que le facteur de qualité ne permet pas de jouer sur cette valeur. Pour s'en faire une idée intuitive, on se propose de suivre la démarche d'Ujihara qui propose la définition d'une surface effective associée à un mode de la cavité planaire [81] bien que critiquée dans [79]. L'idée repose sur le fait que chaque mode se propage dans un angle solide bien défini, ce qui implique qu'il possède une extension spatiale finie. On peut alors montrer que $S_{eff} \propto Q$, ce qui correspond au fait que plus le mode spatial est étendu, plus l'angle de divergence est réduit. Le facteur de qualité se simplifie alors dans la définition du facteur de Purcell (voir équation 2.11) qui quantifie l'exaltation du taux d'émission.

On peut constater d'autre part que la modification est moins profonde dans le cas des miroirs de Bragg, ce qui s'explique par leur acceptance angulaire limitée. Cet aspect sera cependant compensé par la suite, ce qui justifiera pleinement leur utilisation.

Dans la problématique d'obtenir des exaltations du taux d'émission plus importante, une idée naturelle s'impose désormais : confiner le champ dans les autres directions. C'est ce que nous allons voir maintenant.

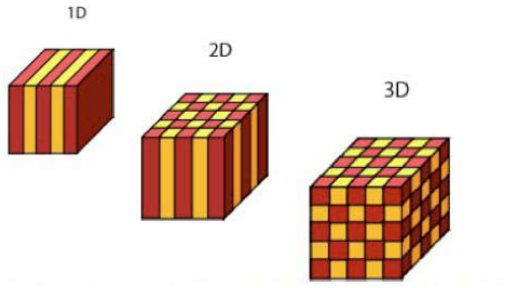


FIGURE 2.14 – Représentation de cristaux photoniques 1D, 2D et 3D.

### 2.3.3 Cristaux photoniques

Un miroir de Bragg est l'exemple typique d'un cristal photonique 1D, c'est à dire un arrangement périodique de milieux diélectriques. Pour résoudre le problème évoqué dans la partie précédente, il n'est cependant pas nécessaire de réaliser un cristal photonique tridimensionnel. On peut se contenter de confiner la lumière par reflexion interne totale dans une ou plusieurs direction afin de réduire la dimensionnalité du problème.

Plusieurs types de microcavités ont été développés sur ce modèle, qui ont atteint des résultats remarquables en termes de facteur de qualité et de volume de confinement. Parmi elles on peut citer les micropiliers ou les cristaux photoniques 2D (CP2D), qui ont tous deux été étudiés au cours de cette thèse. Nous nous contenterons cependant d'une présentation brève de ces derniers, étant donné que nous ne montrerons pas dans ce manuscrit de résultat obtenu à partir de ce type de systèmes. La description des micropiliers fera l'objet de la partie suivante.

Les cristaux photoniques 2D, souvent abrégés cristaux photoniques (CP) dans la littérature, sont obtenus à partir d'une membrane d'un matériau semiconducteur, que l'on grave en suivant un motif périodique. La lumière se propageant dans la membrane voit donc un arrangement périodique de trous, dont l'indice (celui du vide !) diffère de celui de la membrane ($n = 3.3$ dans le cas de GaAs). Ce réseau de trous génère une bande interdite pour les photons, de la même manière que les atomes d'un cristal pour les électrons. On peut alors fabriquer des modes de cavité en introduisant par exemple un défaut dans le cristal. Dans le cas illustré figure 2.15, il s'agit d'une cavité de type H1, obtenue en omettant un motif dans un réseau hexagonal [82].

Ce type de systèmes se distingue par sa capacité à atteindre des volumes de confinement particulièrement réduits. Les calculs montrent que le volume effectif du mode de défaut peut être aussi petit que $0.3\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ et des figures de mérites associant un volume $V = 0.43\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ et un facteur de qualité $Q = 2800$ ont été enregistrées, correspondant aux facteurs de Purcell les plus haut rencontrés à l'état solide ($F_p = 490$) [83].

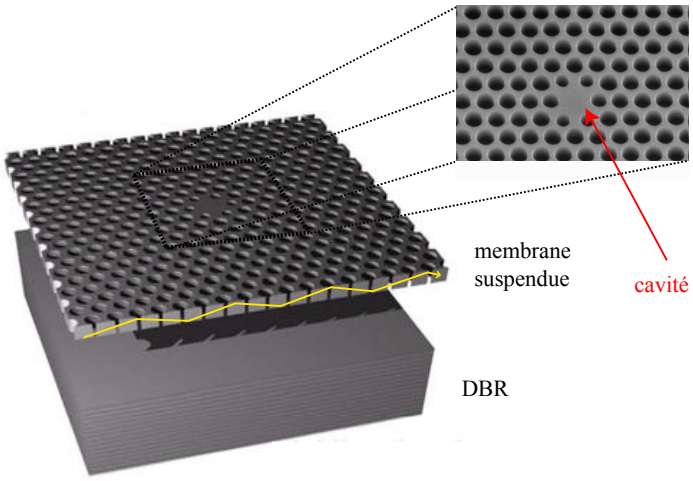


FIGURE 2.15 – Cristal photonique 2D. La lumière est confinée dans le plan par reflexion totale interne (flèche jaune). La cavité apparaît comme une modification de la périodicité du CP. L'utilisation d'un miroir supplémentaire sous la membrane (DBR) permet d'augmenter la collection. Schéma issu de [82]

### 2.3.4 Micropiliers

Les micropiliers sont des structures cylindriques verticales, obtenues par gravure ionique réactive (RIE pour Reactive Ion Etching) à partir d'une cavité planaire à miroirs de Bragg et introduites pour la première fois par Jewell et. al. à la fin des années 80 [84]. Leurs dimensions typiques sont d'une dizaine de micromètres de haut pour un diamètre de quelques microns.

Dans ces structures, les modes du champ sont confinés latéralement par réflexion totale interne et verticalement grâce aux miroirs de Bragg. Ces objets associent donc aux propriétés d'une cavité les caractéristiques d'un guide d'onde. Pour déterminer les modes de résonances de ces structures, on peut effectuer une résolution numérique des équations de Maxwell, qui donne une description exacte, ou suivre le modèle analytique développé par Gérard et. al. [85], dont les solutions sont très proches de la réalité expérimentale. L'idée consiste à déterminer, dans un premier temps, l'ensemble des modes guidés par le micropilier, en supposant sa longueur infinie. L'effet du confinement latéral se traduit alors par la modification de l'indice de réfraction effectif de chacun de ces modes. Les conditions de résonance de ces structures sont ensuite obtenues à partir de celles de la cavité planaire en remplaçant, pour chaque mode guidé, l'indice du milieu par l'indice effectif du mode considéré. La figure 2.17, issue de [85], montre l'excellent accord obtenu entre cette modélisation et les valeurs obtenues expérimentalement. On notera également sur ce graphe, que l'énergie des modes résonnants est d'autant plus grande (ce qui correspond à un décalage vers le bleu) que le rayon du micropilier diminue, traduisant le fait que plus le mode est confiné, plus son indice effectif diminue.

Une autre conséquence de la réduction du diamètre est une diminution du facteur de qualité. Ce phénomène est particulièrement remarquable pour des micropiliers de diamètres inférieurs

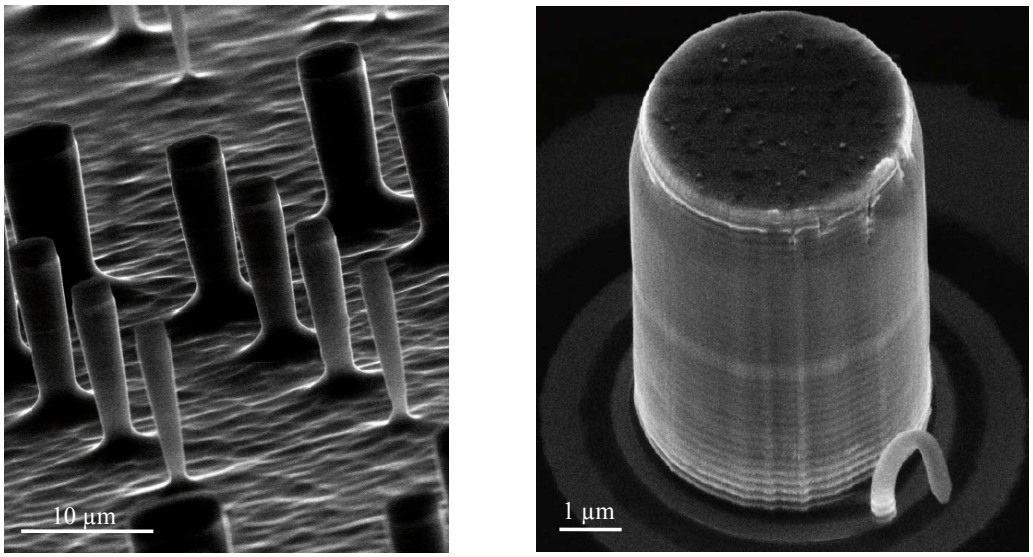


FIGURE 2.16 – Image MEB d'une matrice de micropiliers et zoom sur l'un d'entre eux. Images réalisées au LPN et au CEA-Grenoble.

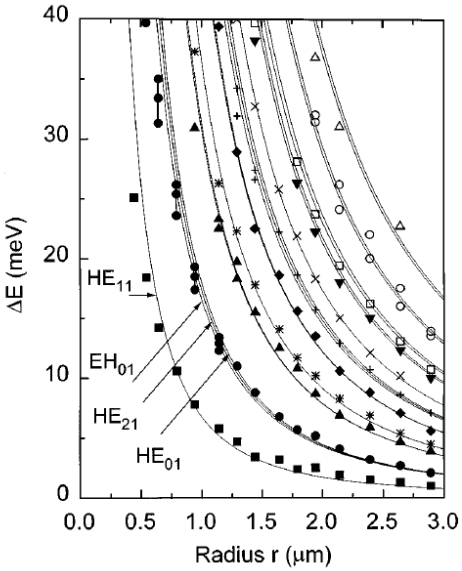


FIGURE 2.17 – Energie de confinement des modes en fonction du diamètre du micropilier (par rapport à la résonance de la cavité planaire). L'ajustement théorique est obtenu à partir du modèle développé dans [85].

à $4\mu m$ et s'explique par une augmentation de l'influence de la rugosité des flancs au fur et à mesure que l'on réduit le diamètre du micropilier, qui provoque la diffusion des photons hors de la cavité. Il est possible de modéliser ce phénomène assez simplement en introduisant un facteur de qualité effectif associé aux pertes par diffusion [86]. On définit alors le facteur de

qualité d'un pilier de diamètre $a$ d'après

$$\frac{1}{Q(a)} = \frac{1}{Q_{int}} + \frac{1}{Q_{diff}(a)} \tag{2.20}$$

où $Q_{int}$ est le facteur de qualité intrinsèque de la cavité planaire et $Q_{diff}$ est calculé à partir de l'intensité du champ au bord du pilier et du rayon. Qualitativement, la dégradation du facteur de qualité avec la réduction du diamètre est expliquée par le fait qu'aux petits diamètres, le mode fondamental n'est plus parfaitement confiné. A l'interface di-électrique/air, le champ est donc d'autant plus grand que le pilier est petit, ce qui augmente le couplage aux modes de pertes. La figure 2.18 montre l'accord entre ce modèle et les valeurs expérimentales obtenues dans [86].

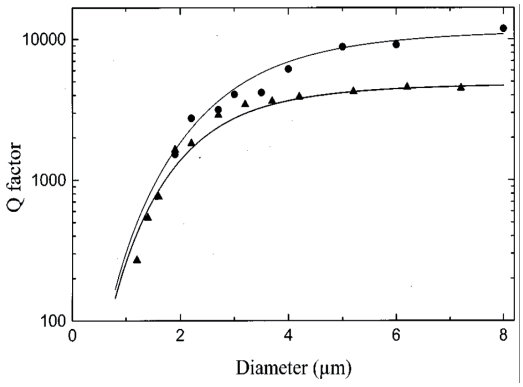


FIGURE 2.18 – Evolution du facteur de qualité en fonction du diamètre. Extrait de [86]

**Le dilemme de l'efficacité**

Le dernier paramètre qu'il faut considérer avec attention est l'*efficacité* du dispositif, qui détermine notamment le potentiel applicatif de ces objets. Dans un système idéal ou l'émetteur est parfaitement couplé à une cavité de finesse infinie, aucun photon ne sort du système ! Si l'on veut pouvoir utiliser les ressources d'un tel système il est donc nécessaire qu'il fuie un peu vers l'extérieur. On distingue alors deux types de pertes, les "bonnes" et les "mauvaises", qui correspondent à celles pour lesquelles on peut récupérer les photons et celles où les photons sont perdus. Pour définir complètement l'efficacité d'une source de photon unique, c'est à dire le rapport entre les photons collectés et le nombre de photons émis, il faut donc prendre en compte trois paramètres : la fraction des photons émis dans le mode de cavité, le degré de couplage du mode guidé aux modes de pertes non-collectés et le recouvrement de son diagramme en champ lointain avec l'ouverture du détecteur ou de tout objet avec lequel il doit interagir (figure 2.19).

- Dans une microcavité réelle, il est évident que les photons émis par la boîte quantique ne le sont pas exclusivement dans le mode de cavité. On observe que les photons sont également émis, avec un taux noté $\gamma$, dans un continuum de modes de pertes. Or, contrairement à ce que l'on pourrait attendre de prime abord, il a été observé que la cavité n'influence que

très peu la dynamique d'émission d'une boîte quantique hors résonance : l'expérience montre que le temps de vie d'une boîte quantique désaccordée est identique à celui d'une boîte quantique dans la matrice homogène ($\Gamma_{libre} = \gamma$)[87]. En d'autres termes, la dynamique d'émission dans les modes de pertes n'est pas inhibée. Ce dernier point peut être compris intuitivement par le fait que le mode de cavité ne contrôle qu'un angle solide restreint. Les photons émis hors de ce cône ne "sentent" donc pas la cavité. On définit alors le *coefficient de couplage au mode* $\beta$, qui donne le rapport entre le nombre de photons émis dans le mode d'intéret et le nombre total de photons émis dans l'ensemble des autres modes, pour une boîte quantique résonnante avec le mode de cavité

$$\beta = \frac{F\Gamma_{libre}}{F\Gamma_{libre} + \gamma} \tag{2.21}$$

avec $F\Gamma_{libre}$ le nombre de photons émis dans le mode de cavité et $\gamma$ le nombre de photons émis dans les modes de pertes. Dans le cas des micropiliers, l'équation 2.21 se simplifie finalement en

$$\beta = \frac{F\gamma}{F\gamma + \gamma} = \frac{F}{F+1} \tag{2.22}$$

Comme attendu, $\beta$ est d'autant plus grand que $F$ est important, ce qui signifie que plus le facteur de Purcell est grand, plus la cavité canalise les photons émis par la boîte quantique. Dans la limite théorique d'un facteur de Purcell infini, le couplage au mode est alors de 100%. Cette propriété est particulièrement importante pour réaliser des lasers à bas seuils. En effet, bien que l'émission spontanée dans le mode de la cavité soit indispensable pour déclencher l'effet laser, l'émission dans les modes de pertes implique une augmentation du taux de pompage nécessaire pour atteindre le seuil.
Ce résultat peut être généralisé pour un désaccord $\Delta = \omega - \omega_0$ quelconque entre la boîte quantique et le mode de cavité, dans le cas où la largeur spectrale associée à la transition atomique est négligeable devant la largeur associée au mode de cavité ($\Gamma_{libre} << \kappa$). En introduisant la fonction lorentzienne $\mathcal{L}(\Delta) = \frac{1}{1+\Delta^2/\kappa^2}$ qui donne la densité d'états dans le mode de cavité, on obtient

$$\beta(\Delta) = \frac{F\mathcal{L}(\Delta)}{F\mathcal{L}(\Delta) + 1} \tag{2.23}$$

- Comme nous l'avons vu, lors de la propagation du mode confiné le long du micropilier, les rugosités de surfaces sur les flancs du micropiliers ont pour effet de diffuser les photons à l'extérieur de la cavité. Ces pertes sont mesurées au moyen du facteur de qualité par le rapport $Q/Q_0$.
- Enfin, lorsqu'une onde rencontre un obstacle (qui se manifeste ici par un changement d'indice brutal à la surface micropilier/vide) sa densité est modifiée par le phénomène de diffraction. On obtient alors un diagramme du rayonnement en champ lointain, qui varie avec la taille et la forme de l'objet. On note $\chi_{cav}$ la fraction des photons qui recouvre l'ouverture du détecteur. Un des atouts principaux des micropiliers concerne justement leur diagramme en champ lointain particulièrement directif. En effet, les résultats obtenus à partir d'expériences résolues en angle ont montré que la diffraction, pour des micropiliers circulaires de diamètres supérieurs à $2\mu m$, reste contenue dans un cône d'angle inférieur à 10° [88]. Dans le cas de notre expérience par exemple, le diagramme d'émission du

mode fondamental est entièrement contenu dans le cône de détection de l'objectif (cf. partie 3).

On obtient donc la définition suivante de l'efficacité, où l'on a fait l'hypothèse que les photons diffusés par les modes de pertes ne sont pas collectés (approximation vraisemblable d'après [88])

$$\epsilon = \beta \frac{Q}{Q_0} \chi_{cav} \tag{2.24}$$

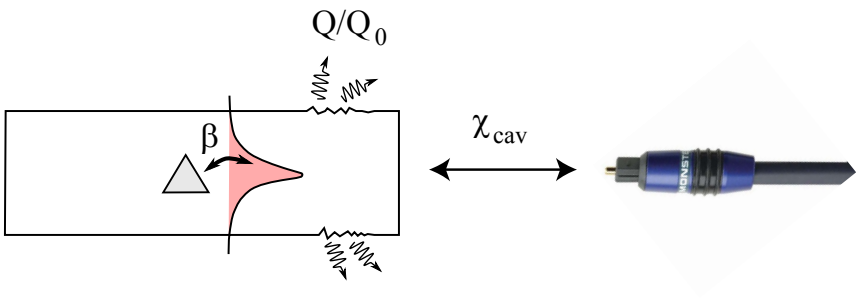


FIGURE 2.19 – Schéma des paramètres intervenant dans l'efficacité d'une source de photons uniques. Le triangle représente une boîte quantique.

On peut alors mettre en évidence le dilemme suivant. Habituellement, la stratégie adoptée pour réaliser des échantillons de fort facteur de Purcell, consiste à partir de cavités planaires de plus grand facteur de qualité intrinsèque possible, pour obtenir après gravure, des micropiliers qui présentent encore des facteurs de qualité de quelques milliers aux diamètres proches du micron. Or on s'aperçoit que la dégradation du facteur de qualité avec la réduction du diamètre est d'autant plus importante que la valeur intiale du facteur de cavité de la cavité planaire est grand (voir [89]). En d'autres termes, le prix à payer pour avoir un facteur de Purcell important (grand facteur de qualité pour un petit volume effectif) est un mauvais rapport $Q/Q_0$. Il faut donc aujourd'hui faire face au dilemme entre augmenter $\beta$ ou $Q/Q_0$, alors qu'on les souhaiterait tous deux le plus proches possible de un. Il est d'ailleurs intéressant de noter, qu'à ce jour, les meilleurs efficacités mesurées sur des micropiliers ($\epsilon = 44\%$) ont été obtenues pour des facteurs de Purcell relativement modeste ($F = 3$) [48].

# Chapitre 3

# Caractérisations optiques

## Contents


**3.1 Dispositif expérimental . . . . . 34**

3.1.1 Cryostat à doigt froid . . . . . 34

3.1.2 Excitation optique . . . . . 36

3.1.3 Système d'imagerie . . . . . 37

3.1.4 Éléments de détection . . . . . 37

**3.2 Caractérisation optique et expériences préliminaires . . . . . 40**

3.2.1 Description de l'échantillon . . . . . 40

3.2.2 Expérience de micro-photoluminescence . . . . . 41

**3.3 Mesure du facteur de qualité . . . . . 44**

3.3.1 Comment mesurer le facteur de qualité dans une expérience de micro-photoluminescence . . . . . 44

3.3.2 Comparaison avec une expérience de réflectivité . . . . . 46

3.3.3 Mesure du facteur de qualité en fonction du diamètre . . . . . 48

**3.4 Avant-propos concernant les chapitres 4 et 5 . . . . . 49**


Afin de sonder les propriétés optiques de boîtes quantiques individuelles, il faut disposer d'un montage expérimental possédant une excellente résolution à la fois spatiale et fréquentielle : d'une part pour exciter un nombre restreint de boîtes quantiques, et d'autre part pour pouvoir les distinguer les unes des autres. Par ailleurs, l'étude de leur dynamique requiert de pouvoir détecter des photons avec une résolution temporelle supérieure au $GHz$. On présente donc dans ce chapitre l'expérience de micro-photoluminescence (micro-PL) qui a été entièrement réalisée au cours de cette thèse, ainsi que les expériences préliminaires qui permettent de caractériser un échantillon de boîtes quantiques en cavité.

## 3.1 Dispositif expérimental

La figure 3.1 présente le schéma expérimental que nous avons utilisé, où l'on peut reconnaître les différents éléments d'un montage typique de micro-PL : dans la partie gauche, les élément d'excitation (lasers, diodes), à droite, l'échantillon dans son environnement cryogénique, en haut les éléments de détection (monochromateur, caméra CCD, photodiode à avalanche) et enfin en bas les éléments liés à la mesure de puissance et au positionnement du faisceau laser (système de visualisation et platines piézo-électriques).

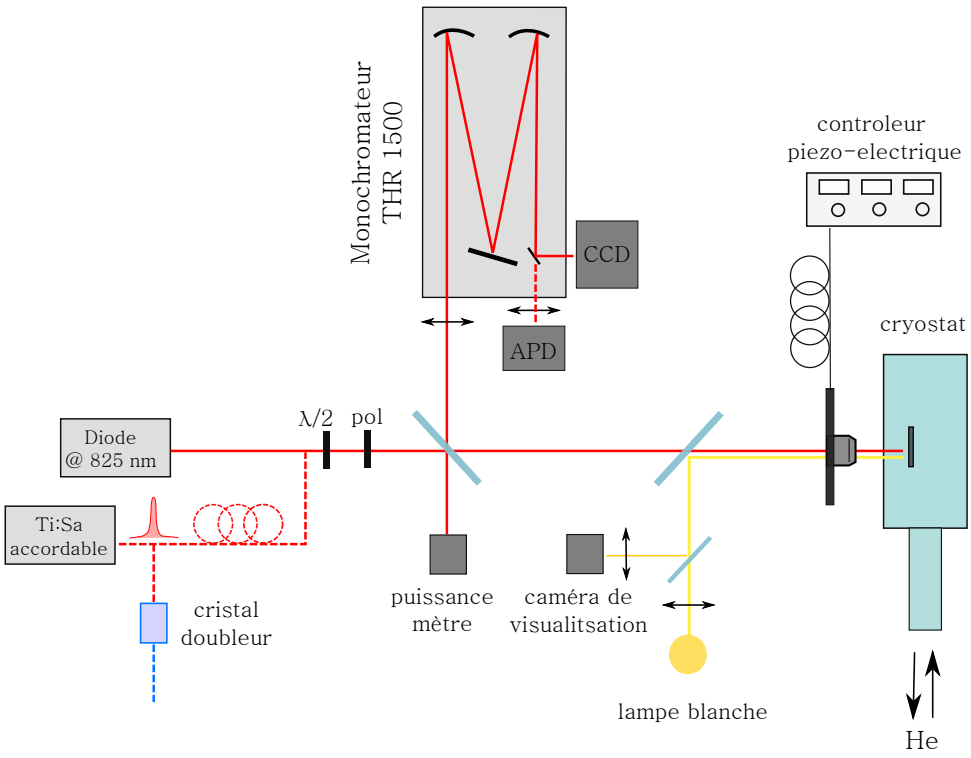


FIGURE 3.1 – Schéma du montage expérimental.

### 3.1.1 Cryostat à doigt froid

Pour étudier le spectre discret d'émission d'une boîte quantique il faut vaincre l'agitation thermique et donc travailler à basse température. Pour ce faire, notre échantillon est placé dans un cryostat refroidi à l'helium liquide à une température minimale de 4.2 $K$. Le cryostat utilisé pour l'ensemble des expériences présentées dans ce mémoire est présenté à la figure 3.2. Il s'agit d'un cryostat à circulation d'hélium continue fabriqué chez Oxford Instrument, qui ne possède pas de réservoir propre. L'hélium liquide est amené via une canne de transfert depuis un vase en contact avec le sol vers un échangeur de chaleur situé près de l'échantillon. Le gaz produit est ensuite récupéré et stocké pour être re-compressé. Le flux d'helium peut être contrôlé au moyen d'une valve pointeau située sur la canne de transfert et en ajustant la

pression dans le vase entre 100 à 500 $mbar$. Un thermomètre et un thermocouple, asservis par un contrôleur de température, permettent d'ajuster la température entre 4.2 et 180 $K$ à 0.1 $K$ près. La dilatation thermique est faible ( $< 100nm/K$), ce qui permet de conserver un bon alignement pour des variations de températures de quelques kelvins.

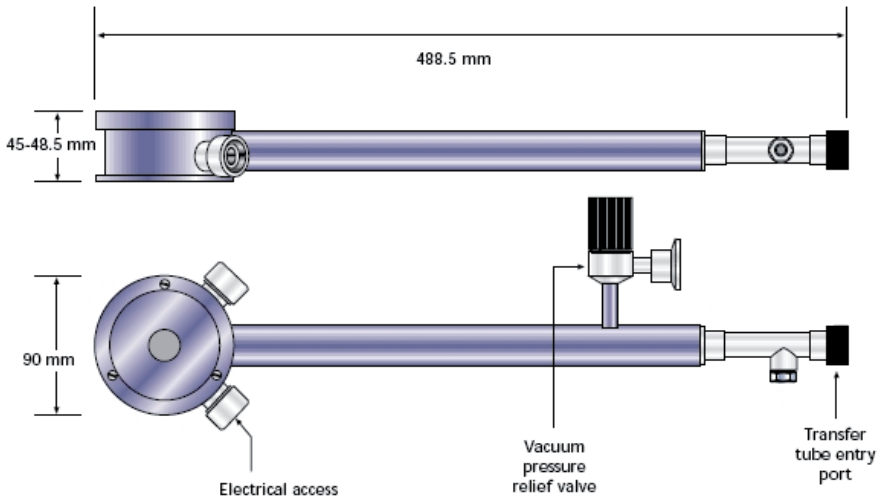


FIGURE 3.2 – Schéma du cryostat à doigt froid utilisé dans notre expérience.

L'échantillon est placé dans une chambre sous vide sur le doigt froid. Étant donné que le refroidissement se fait par contact thermique, le choix de la "colle" utilisée pour fixer l'échantillon est primordial. Nous avons utilisé une laque d'argent, qui présente une bonne conductivité thermique.

L'accès optique se fait par une fenêtre circulaire de 10 $mm$ de diamètre et de 0.5 $mm$ d'épaisseur située à la verticale de l'échantillon. Une seconde fenêtre située sous l'échantillon permet d'envisager des expériences en transmission. L'objectif doit être disposé hors du cryostat à une distance minimale de quelques $mm$ de la surface de l'échantillon, ce qui limite le choix de la focale et de son ouverture numérique. L'objectif que nous avons utilisé est un Olympus LMPL dont la distance de travail est de 8.1 $mm$ optimisé pour l'infra-rouge, et doté d'une ouverture numérique $O.N = 0.4$. Le grossissement ainsi obtenu est de 20×. Cet objectif est monté sur des platines piezo-électriques de marque Thorlabs offrant une précision de positionnement de 50 $nm$, et contrôlables informatiquement.

En termes de vibrations mécaniques, un système de ressorts permet de découpler partiellement le cryostat du vase d'Hélium auquel il est connecté. Le résultat offre une très bonne stabilité.

Enfin, le contrôleur de température a été interfacé informatiquement au moyen d'un programme Labview afin de pouvoir réaliser des balayages en température automatisés.

### 3.1.2 Excitation optique

#### Excitation non-résonnante

Comme nous l'avons vu, les boîtes quantiques InAs/GaAs émettent dans le proche infrarouge autour de 900 $nm$ environ. Pour réaliser une excitation non-résonnante tout en minimisant l'absorption par les miroirs de Bragg, le système est pompé dans la couche de mouillage, à une énergie légèrement inférieure à celle du gap de GaAs, soit à une longueur d'onde légèrement supérieure à 817 $nm$ (voir figure 2.9). Pour ce faire on dispose de deux sources, l'une émettant en régime continu, l'autre en régime pulsé.

La source continue est une diode laser émettant à $825nm$, dont l'intensité et la température sont contrôlés par un contrôleur Thorlabs ITC 502. Dans le régime de fonctionnement usuel, la puissance de sortie est de $60mW$. On utilise un jeu de densité optiques couplé à un système lame demi-onde/polariseur pour obtenir un ajustement précis de la puissance d'excitation.

La source pulsée est un laser Titane-Saphire solide, à blocage de modes, de modèle Tsunami fabriqué par Spectraphysics fonctionnant entre 650 à 980 $nm$. La longueur d'onde d'émission peut être variée continûment à l'aide d'un filtre de Lyot biréfringent disposé à l'intérieur du laser et actionné au moyen d'une vis micrométrique. La courbe de gain présente un maximum autour de 800 $nm$.

Le barreau de Ti :Sa est pompé par un laser YAG doublé (Millennia Xs J) émettant à 532 $nm$ et délivrant une puissance de sortie maximum de 10 $W$. En fixant la pompe à 9 $W$ on obtient, à la sortie du Tsunami, une puissance de $\sim 1.5$ $W$ à 825 $nm$. La lumière est ensuite couplée dans une fibre optique monomode pour être amenée jusqu'à notre table optique. Nous verrons dans la section 3.3 comment on utilise cette fibre pour générer un spectre "blanc" à partir de l'émission du Ti :Sa.

Le taux de répétition des impulsions ainsi générées est de 80 $MHz$, soit une impulsion toute les 12.2 $ns$. Le blocage de mode est assisté par un modulateur acousto-optique, qui introduit des pertes modulées dans le temps à la fréquence de répétition du laser. On obtient de cette manière l'accord de phase entre les différents modes longitudinaux de la cavité, qui permet de créer un pulse unique circulant dans la cavité. La largeur temporelle de ces impulsions varie entre une et quelques dizaines de pico-secondes. Cette valeur peut être optimisée au moyen d'un interféromètre de Gires-Tournois, qui permet de compenser la dispersion de la vitesse de groupe induite par les éléments optiques de la cavité. Pour obtenir le meilleur réglage, on utilise un cristal doubleur situé en sortie de laser. En effet, pour une puissance moyenne identique, l'efficacité de la génération d'une seconde harmonique dépend de la puissance crête d'une impulsion. En maximisant l'efficacité du doublage à puissance moyenne constante, on minimise la durée d'un pulse.

#### Excitation résonnante, ou quasi-résonnante

Nous disposons également d'une source continue accordable en fréquence entre 900 et 960 $nm$ utilisable pour des excitations résonnantes, ou quasi-résonnantes. Il s'agit d'une diode

DL100 de marque Toptica, délivrant une puissance de sortie maximum de 45 $mW$. Son principe de fonctionnement diffère légèrement d'une diode standard et combine l'utilisation d'une diode laser et d'un réseau de diffraction qui permet notamment de sélectionner une longueur d'onde précise. La finesse de l'ensemble du système est augmentée par rapport à une diode usuelle et atteint 1 $MHz$ (valeur fournie par le constructeur) contre $\sim 100$ $MHz$ dans le cas standard.

La DL100 possède en outre la capacité d'effectuer des scans sans sauts de mode sur une fine plage spectrale grâce à un système de cales piézo-électriques associé réseau. Cette particularité sera plus particulièrement exploitée dans le chapitre 6.

### 3.1.3 Système d'imagerie

Afin de pouvoir se repérer sur la surface de l'échantillon, il est nécessaire de disposer d'un système d'imagerie. Pour ce faire on utilise une LED infrarouge à large bande spectrale (désignée sous le nom de "lampe blanche" sur la figure 3.1), dont on collimate le faisceau, qui est ensuite intégré sur l'axe optique au moyen d'une lame 50/50. On éclaire ainsi la surface de l'échantillon dans le champ vu par l'objectif. L'image de l'échantillon obtenue est alors envoyée sur une caméra de visualisation avec un grossissement $G$ fixé par le rapport des focales de l'objectif et de la lentille utilisée devant la caméra. On obtient $G \sim 1000$, ce qui nous permet d'observer les détails de la surface de l'échantillon à l'échelle micrométrique et d'identifier les micropiliers. La caméra utilisée est une WAT-120N du constructeur WATEC.

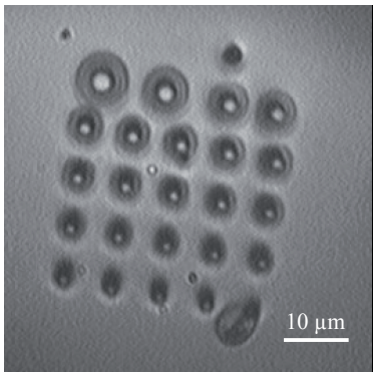


FIGURE 3.3 – Image d'une matrice de micropiliers telle qu'elle apparaît sur notre écran de visualisation.

L'image présentée à la figure 3.3 montre une matrice de micropiliers observée sur notre échantillon. Chaque matrice est constituée de 24 piliers dont les diamètres varient entre 1 et 6$\mu m$. La taille du spot laser à la surface de l'échantillon est évaluée à $\sim 3$ $\mu m$.

### 3.1.4 Éléments de détection

Les photons émis sont ensuite envoyés dans un spectromètre qui diffracte la lumière et étale les longueurs d'onde. On peut alors observer l'intensité en fonction de la longueur d'onde sur une caméra CCD, ou étudier leur dynamique au moyen d'une photodiode à avalanche (APD).

**Spectromètre**

Le spectromètre que nous utilisons est THR1500 mis au point par Jobin-Yvon. Il s'agit d'un spectromètre à très haute résolution, de distance focale $F = 1500\ mm$ capable de fonctionner en simple ou double passage. L'ouverture étant de $F/12$, soit environ 5°, on utilise une lentille d'entrée de focale $f = 100\ mm$, qui nous permet d'optimiser la résolution à partir du diamètre du faisceau incident ($\sim 10\ mm$). L'ouverture des fentes est fixée à 20 $\mu m$.

On utilise principalement un réseau holographique de 1200 traits, blazé à 750 $nm$, dont la transmission est optimisée dans le proche infrarouge (environ 50% à 900 $nm$ en lumière non polarisée). On peut évaluer le pouvoir de résolution $R_{theo}$ du réseau, qui s'écrit

$$R_{theo} = k.N.m \tag{3.1}$$

où $k$ est l'ordre de diffraction, $N$ le nombre de traits gravés sur la surface totale du réseau, et $m$ correspond au nombre de passages. On trouve $R_{theo} = 132000$, soit une résolution spectrale d'environ 0.006 $nm$ à 900 $nm$. Un second réseau de 1800 traits qui augmente la résolution d'un facteur 3/2 peut également être utilisé si nécessaire. Sa transmission est cependant moins élevée ($\sim 20\%$).

La résolution expérimentale est obtenue à partir de la figure 3.4 en mesurant la largeur à mi-hauteur d'une raie dont la largeur naturelle est bien inférieure à la résolution. C'est le cas ici pour cette raie laser obtenue à partir de la DL100 à 930 $nm$, d'où l'on déduit la résolution de notre montage $\Delta\lambda = 0.009\ nm$ (soit 13 $\mu eV$). Cette valeur est cohérente avec nos prédictions théoriques.

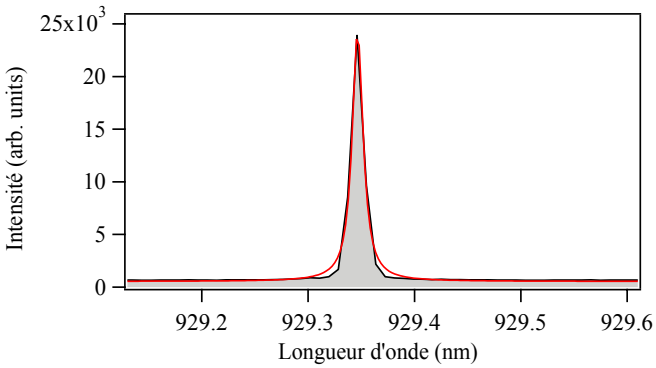


FIGURE 3.4 – Raie d'émission de la diode laser DL100 à 930$nm$ mesurée sur la CCD après le passage dans le spectromètre. La largeur à mi-hauteur donne la résolution expérimentale du montage.

On porte également à l'attention de l'expérimentateur qui lira ces lignes, qu'une bonne stabilité de la température de la pièce est nécessaire lorsque l'on utilise des spectromètres de cette taille. En effet, nous avons pu mettre en évidence des déplacements de raies de quelques centièmes de nano-mètres corrélées aux variations de températures au cours d'une journée. En

d'autres termes, un instrument de cette taille est sensible aux dilatations thermiques liées à des changements de températures dans la pièce de quelques degrés seulement !

Finalement, on donne la transmission globale entre les fentes d'entrée et de sortie pour un faisceau non polarisé. A $900nm$, la mesure donne 35%, et prend en compte le réseau et les miroirs qui constituent le spectromètre. Ce résultat est notamment utile lors des phases d'alignement, et permet de s'assurer qu'aucune autre perte ne vient s'additionner.

### Caméra CCD

Placée en sortie de spectromètre, on trouve la caméra CCD (pour Charge Coupled Device). L'ensemble des spectres présentés dans ce mémoire ont été obtenus sur une Pixis 100 de Princetown Instrument, refroidie par effet Peltier à $-35°C$. Son capteur contient $1340 \times 100$ pixels et chaque pixel mesure $20\mu m \times 20\mu m$. On obtient donc, lorsque l'on place la caméra en sortie du spectromètre, une fenêtre spectrale d'environ 10 $nm$. Son efficacité quantique est de 25% dans le proche infrarouge (figure 3.5).

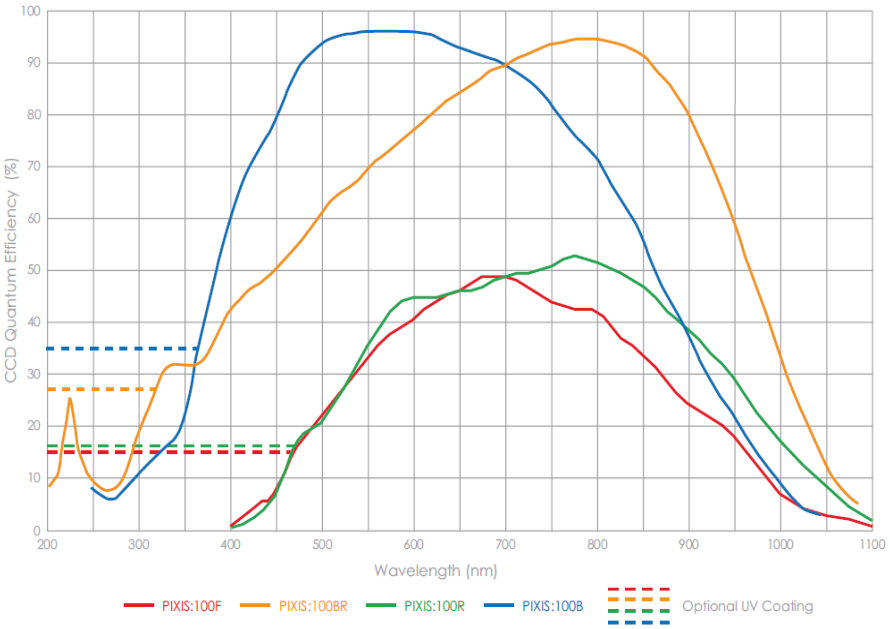


FIGURE 3.5 – Rendement quantique de la camera CCD en fonction de la longueur d'onde. En rouge, notre modèle. Données constructeur

On distingue deux sources de bruit sur une caméra CCD. La première est associée au transfert des photo-électrons et est générée par le registre de lecture et l'amplificateur de sortie. On parle de bruit de lecture. Il est indépendant du temps, mais dépend de la vitesse de lecture. Nous avons choisi une cadence de transfert de 100 $kHz$ afin d'en minimiser l'effet. Nous mesurons $\Delta_{lect} = 4.2 \pm 0.05\ e - rms$, valeur légèrement supérieure à celle annoncé par le constructeur ($2.5\ e - rms$). La seconde source de bruit est associée au courant d'obscurité

et dépend du temps d'intégration. Nous mesurons, à $-35°C$, un courant de 0.003 $e/pix/s$, qui se compare bien avec la valeur annoncée par le constructeur à $-80°C$ (0.002 $e/pix/s$). On constate cependant une certaine inhomogénéité ($> 100\%$) à la surface du capteur.

**Photodiode à avalanche**

Pour réaliser les mesures résolues en temps, on dispose d'une photodiode à avalanche (APD) $id100-20$ produite par $id$-Quantique. L'APD dispose d'un capteur en silicium sensible à un très petit nombre de photons, caractéristique indispensable pour étudier la dynamique d'émission associée à une transition isolée. Malheureusement, si son rendement quantique est remarquable dans le visible (jusqu'à 35%), celui-ci chute dans le proche infra-rouge et ne représente plus que 4% à $900nm$, rendant certaines mesures délicates. D'autre part, elle présente une bonne résolution temporelle($\sim 40ps$) et un temps mort réduit ($\sim 45ns$).

Enfin, l'APD est associée à une carte de comptage Becker&Hickel SPC-630, qui mesure l'intervalle de temps entre deux événements. Le principe repose sur la combinaison d'un convertisseur temps/amplitude (TAC pour Time to Amplitude Converter) et d'un analyseur multicanaux (ADC pour Analog to Digital Converter) qui numérise les tensions. Lorsqu'un signal de départ est donné, le TAC déclenche une rampe de tension. Au moment ou le signal de fin est détecté, la tension correspondant au temps écoulé est relevée et numérisée. Ce résultat est alors enregistré en incrémentant le canal correspondant au temps mesuré.

## 3.2 Caractérisation optique et expériences préliminaires

### 3.2.1 Description de l'échantillon

L'échantillon dont sont issues les données présentées dans ce mémoire a été fabriqué au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN), à Marcoussis. Il s'agit d'un échantillon de boîte quantiques InGaAs/GaAs, obtenues par croissance auto-organisée dans un bâti d'épitaxie par jet moléculaire, recuites à $835°C$ et dont la densité est estimée à $2.5 \times 10^9$ BQ/cm$^2$. Ces boîtes quantiques sont insérées au centre d'une cavité-$\lambda$ de type fabry-pérot réalisée à partir de matériaux semiconducteurs. Les miroirs du haut et du bas sont constitués respectivement d'une alternance de 28 et 32 couches d'$Al_{0.95}Ga_{0.05}As$ et d'$Al_{0.1}Ga_{0.9}As$. Le résultat forme une cavité symétrique de facteur de qualité $Q_0 = 14000$, la différence entre le nombre de couches du haut et du bas permettant de compenser la différence d'indice entre l'air et le GaAs sur lequel repose la base du micropilier. On notera que, le plus souvent, cette configuration n'est pas souhaitée. En effet, dans ce cas, la moitié des photons est émise en pure perte dans le substrat de GaAs, ce qui peut facilement être évité en augmentant la réflectivité du miroir du bas (cavité asymétrique). Ce choix est en réalité motivé par un autre objectif : mettre en évidence la réflexion induite par une boîte quantique unique. Ce point sera développé plus en détail dans le chapitre 6. Les micropiliers sont ensuite obtenus par gravure ionique réactive. Le motif utilisé pour réaliser le masque de gravure permet d'obtenir un échantillon de micropiliers présentant des diamètres compris entre 1 et 6 $\mu$m (voir figure 3.3).

Dans la pratique, la résolution spatiale du montage ($\sim 3\ \mu m$) permet d'adresser sélectivement un seul micropilier, contenant lui-même plusieurs dizaines de boîtes quantiques. Nous verrons dans la partie suivante, qu'il est malgré tout possible d'étudier l'influence de la cavité sur une boîte quantique unique à partir de cet échantillon. Les résultats établis dans ce mémoire montrent toutefois qu'il est nécessaire de tenir compte de l'influence des émetteurs additionnels présents dans la cavité. En définitive, les différences entre le paradigme atomique et le système étudié peuvent être résumé comme sur la figure 3.6.

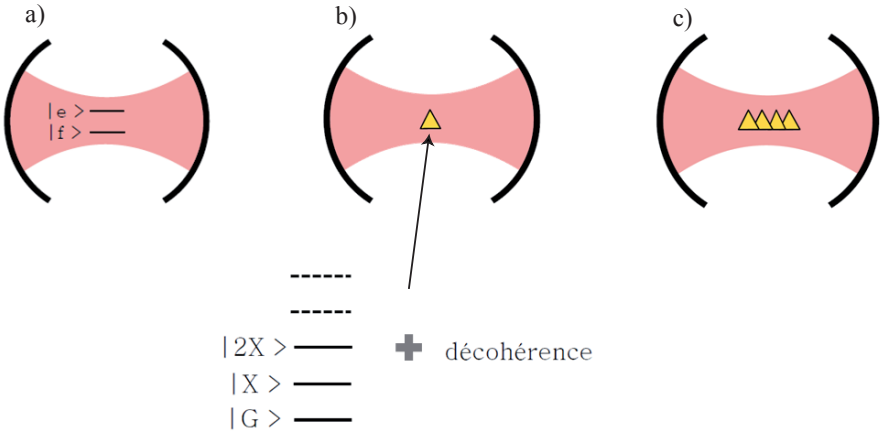


FIGURE 3.6 – a) Système modèle : un système à deux niveaux dans une cavité monomode. b) Cas idéal d'une boîte quantique semiconductrice unique dans une cavité monomode. Le système diffère par la présence d'états excités supplémentaires et une plus grande décohérence, associée à l'influence du réseau environnant. c) Système réel : un ensemble de boîtes quantiques dans une cavité monomode.

### 3.2.2 Expérience de micro-photoluminescence

La figure 3.7 montre un exemple de spectre de photoluminescence des boîtes quantiques obtenu sur un micropilier de 1.8 $\mu m$. L'expérience est réalisée pour deux puissances de pompe différentes, dans des conditions d'excitation continue et non-résonnante, à 4 $K$. Afin d'augmenter la lisibilité, l'intensité est multipliée par trois aux longueurs d'onde inférieures à 920 $nm$ (repère en pointillés noir). La luminescence des boîtes quantiques se traduit par un ensemble de raies fines réparties entre 880 à 930 $nm$, qui forment la raie inhomogène. Cette distribution spectrale est une illustration directe des variations de tailles entre les boîtes quantiques au sein d'un même échantillon. En effet, de manière générale, plus une boîte quantique est grande plus son émission est décalée vers l'infrarouge. A forte puissance (courbe bleue) on observe le chargement des niveaux excités, qui se traduit par une augmentation du nombre de raies visibles. A faible puissance, le nombre de raies permet de donner une estimation du nombre de boîtes quantiques ($\sim 100$ dans notre cas).

Pour obtenir le couplage d'une boîte quantique unique avec la cavité, on réalise une sélection spectrale en "préparant" les cavités de telle sorte que le mode fondamental soit situé dans

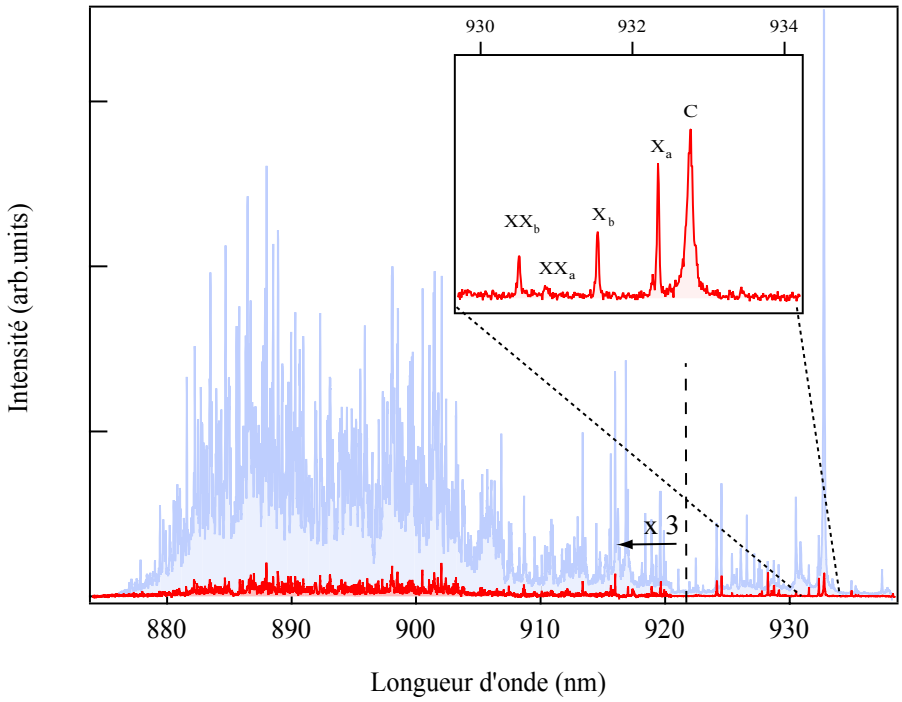


FIGURE 3.7 – Spectre de photoluminescence de la raie inhomogène à $4K$ avec un agrandissement de la zone d'intérêt (insert). On peut identifier le mode fondamental de la cavité (C), ainsi que les excitons (X) et bi-excitons (XX) de deux boîtes quantiques $a$ et $b$.

la queue de la raie inhomogène. L'encadré de la figure 3.7 montre alors que seules quelques boîtes quantiques sont spectralement proches de la cavité à 930 $nm$. D'autre part, afin de minimiser la probabilité de coupler un état excité de boîte avec le mode de cavité, on choisit le coté basses énergies (grandes longueurs d'onde).

Penchons nous un peu plus sur l'agrandissement aux grandes longueurs d'onde. Pour identifier plus précisément la nature des raies que l'on observe, on réalise une montée en puissance dont le résultat est reporté à la figure 3.8. Deux comportements se distinguent. Dans le premier cas (X), l'intensité suit une progression linéaire avec la puissance, typique de l'exciton, et sature pour $P \simeq 150\mu W$ lorsque l'on injecte en moyenne un exciton par temps de vie de la boîte. Dans l'autre cas, l'intensité suit une évolution quadratique, qui est la signature du biexction (la plage de puissance limitée empêche d'observer une saturation qui est, là aussi, attendue). On peut alors identifier les raies comme indiqué où $X_a$ et $X_b$ correspondent à deux raies de type excitoniques et $XX_{a,b}$ sont les biexcitons associés. On note que, dans notre cas, le biexciton est décalé vers le bleu d'environ 1.5 $nm$, ce qui est cohérent avec le résultat donné dans [90], obtenus sur le même type d'échantillons.

**Remarque :** En réalité nous ne pouvons pas ici affirmer avec certitude que $XX_a$ corres-

pond à $X_a$. Nous nous basons ici sur la comparaison de l'énergie de liaison entre l'exciton et le biexciton mesurée sur nos spectres ($\Delta\lambda_{X-XX} \simeq 1\ nm$) avec les valeurs observées dans la littérature pour des boîtes similaires [46]. En toute rigueur, il faudrait réaliser des mesures de corrélations croisées pour pouvoir conclure qu'il s'agit de deux transitions d'une même boîte. De même, il est possible que $X_b$ ne corresponde pas à l'émission d'une seconde boîte mais à l'émission, décalée en fréquence, de la boîte $a$ dans le cas où celle-ci possède une charge excédentaire. Là encore, une expérience de corrélations permettrait de trancher de manière définitive.

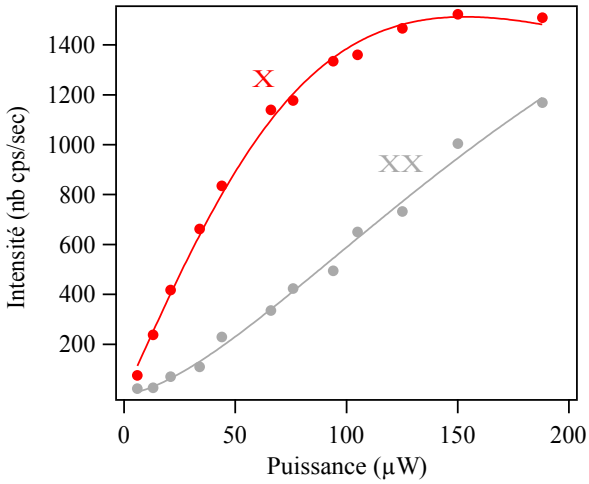


FIGURE 3.8 – Evolution de l'intensité de PL en fonction de la puissance d'excitation pour l'exciton (X) et le biexciton (XX).

Il est ensuite possible de modifier le désaccord entre la boîte quantique et la cavité en jouant sur la température. La figure 3.9 montre le résultat d'une variation de température de $30K$ sur la position spectrale des boîtes quantiques et du mode de cavité. On observe une variation très différente, qui permet ici de réaliser l'accord spectral de $X_a$ pour une température de 19.5 $K$. Ce phénomène, bien que parfaitement connu [91, 92, 93], est tout à fait fondamental, puisqu'il montre que l'on peut commuter entre les situations à résonance et hors résonance de manière simple et réversible. Il s'agit d'un avantage considérable pour étudier les effets d'une cavité sur un émetteur. Enfin, on pourra remarquer, sur cette même figure, une exaltation de l'émission de la boîte quantique au passage à résonance, qui illustre l'influence de la cavité. Bien entendu, nous devrons séparer la contribution géométrique de la modification du taux d'émission pour extraire une valeur du facteur de Purcell (voir chapitre 4).

Comme il a déjà été dit, l'importance de l'effet Purcell dépend de l'accord spectral, mais aussi du couplage spatial entre l'émetteur et la cavité. Or s'il est possible de trouver un candidat qui satisfasse les critères de couplage spectral par des mesures de micro-PL, rien n'indique *a priori*, qu'il soit spatialement bien positionné. Dans la pratique, la probabilité est même très faible au contraire. La recherche d'un candidat qui satisfasse les deux critères est donc une étape longue et fastidieuse, qui nécessite beaucoup de patience. Plusieurs groupes ont proposé

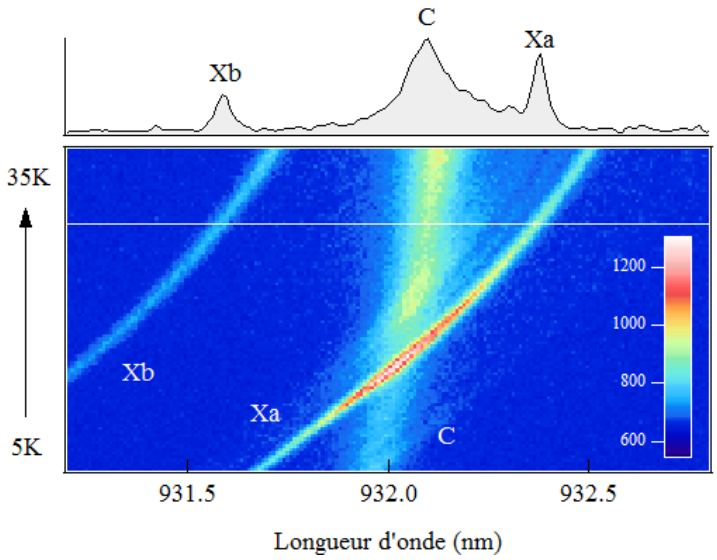


FIGURE 3.9 – Evolution des longueurs d'onde d'émission des boites $X_a$ et $X_b$ et du mode de cavité, en fonction de la température. La ligne blanche indique la température à laquelle est obtenu le spectre du haut. L'intensité (en nombre de coups par seconde) est codée en couleur. On indique également que l'échelle des température n'est pas rigoureusement linéaire.

des stratégies différentes pour résoudre ce problème et proposer un couplage déterministe à la fois spectral et spatial. Des résultats convaincants ont été obtenus aussi bien pour des cavités à cristaux photoniques que pour des micropiliers. Une revue de ces résultats est proposée en appendice A.

## 3.3 Mesure du facteur de qualité

Dans un système solide, la mesure du facteur de qualité est compliquée par la présence du milieu actif, susceptible d'introduire des pertes supplémentaires et dont il faut tenir compte. Nous présentons ici le résultat obtenu à partir de deux méthodes différentes. La première consiste à générer une lampe blanche à l'intérieur de la cavité à partir de l'émission des boîtes quantiques. La seconde consiste à réaliser la spectroscopie de la cavité au moyen d'une source extérieure.

### 3.3.1 Comment mesurer le facteur de qualité dans une expérience de micro-photoluminescence

Dans une expérience de micro-PL sur un ensemble de boîtes quantiques en cavité, il était jusqu'à très récemment admis que la cavité apparaît sous la forme d'une lorentzienne dont la largeur reflète le facteur de qualité $Q$ du mode [85]. Ce résultat est pourtant loin d'être évident : d'une part, la présence d'un milieu actif au sein de la cavité introduit des pertes

supplémentaires, et d'autre part, il a été montré que la redirection géometrique de l'émission spontanée, associée à l'effet Purcell, peut modifier la largeur mesurée [94].

On se propose donc ici d'observer l'influence de deux paramètres (température et puissance d'excitation) sur la mesure du facteur de qualité, l'objectif étant de déterminer sous quelles conditions une mesure fiable du facteur de qualité peut être obtenue. La figure 3.10 montre l'évolution du "facteur de qualité apparent" $Q_{app}$ mesuré sur un pilier de 4 $\mu m$ de diamètre en fonction de la puissance de pompe, pour quatre températures différentes, sous excitation continue. A 4 $K$, l'effet de l'augmentation de la puissance est net et se traduit par une augmentation du facteur de qualité apparent, qui atteint une valeur limite pour $P = 700\mu W$ (cercles bleus). Cette puissance correspond au seuil de transparence au delà duquel les boîtes quantiques sont saturées et ne peuvent plus absorber. Ce résultat est compatible avec les valeurs de saturations obtenues pour une boîte quantique unique (voir section 4.2). Nous mesurons donc la valeur du facteur de qualité à partir de la valeur limite atteinte dans le régime des fortes puissances.

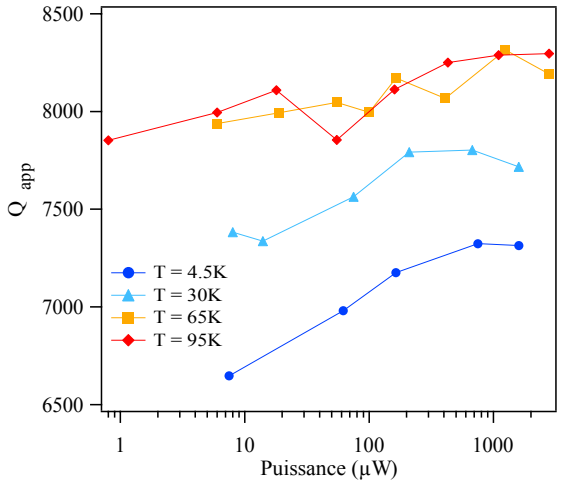


FIGURE 3.10 – Evolution du facteur de qualité mesuré dans une expérience de micro-PL en fonction de la puissance.

On peut également remarquer que le seuil de transparence est atteint de plus en plus tôt au fur et à mesure que la température augmente. Il est possible de donner une explication qualitative de ce phénomène en anticipant les résultats qui seront présentés à la section 4.2. Nous mettrons alors en évidence que l'efficacité du pompage dépend de la température. La figure 4.8 montre en effet que la puissance requise pour saturer une boîte quantique est divisée par 3 lorsque l'on passe de 5 à 35 $K$. Nous retrouvons ici un résultat similaire entre la courbe obtenue à 4 $K$, pour laquelle le seuil de transparence est atteint autour de $700\mu W$, et celle obtenue à 30 $K$, où le seuil se situe vers $200\mu W$, qui semble confirmer cette hypothèse.

Enfin, on constate que l'ensemble de ces données ne converge pas vers la même valeur et que le facteur de qualité mesuré est d'autant plus grand que la température est importante. Ce résultat étant par ailleurs accompagné d'un décalage de la position des modes vers les grandes longueurs d'ondes (traduisant une modification structurale de la cavité), nous avons voulu confirmer nos mesures au moyen d'une autre méthode.

### 3.3.2 Comparaison avec une expérience de réflectivité

#### Génération d'un spectre blanc

En développant notre montage expérimental, nous souhaitions disposer d'un moyen pour effectuer des mesures de réflectivité, qui soit intégré à notre dispositif expérimental. Une première idée consiste à utiliser de simples LED commerciales et constitue une solution bon marché. Cependant, à cause de la puissance d'émission limitée à quelques milli-Watt pour un spectre de plusieurs dizaines de nanomètres, et du mauvais recouvrement entre les champs lointains de la DEL et du pilier, il s'est avéré impossible de concilier un nombre de coups suffisant et l'intégration au sein du dispositif déjà existant. Nous nous sommes donc tournés vers une solution alternative originale, utilisant les propriétés non-linéaires d'une fibre optique.

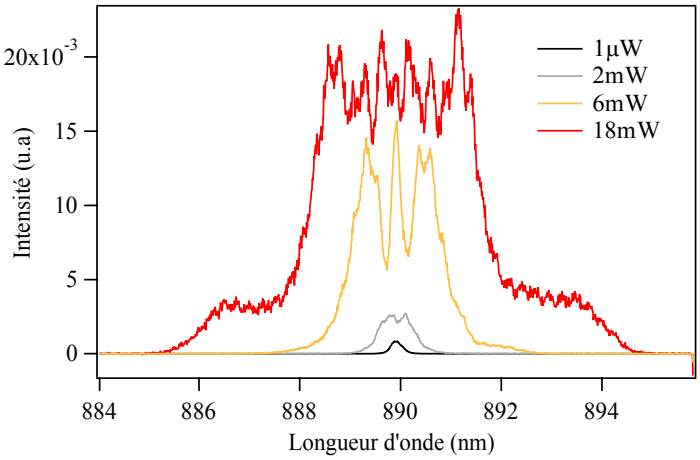


FIGURE 3.11 – Spectre laser collecté après passage dans une fibre optique pour différente puissance. L'allure du spectre obtenu à $P = 1\mu W$ (en noir) est identique à celle que l'on peut mesurer avant la fibre.

En effet, il a été montré en 1974, que les fibres optiques pouvaient être utilisées pour générer des pseudo-continua à partir de pulses laser pico-seconde [95]. L'élargissement spectral du pulse initial repose sur une modulation de phase due aux variations de l'indice de réfraction avec l'intensité. On peut montrer que cet élargissement est proportionnel à la puissance d'excitation, à la longueur de la fibre et qu'il dépend de la forme du pulse. La figure 3.11 montre le résultat obtenu avec notre laser Titane-Saphire à la sortie d'une fibre de 30 $m$. Le test est effectué pour différente puissances, et montre un élargissement progressif lorsque l'on augmente la puissance. On obtient finalement, pour une puissance d'entrée d'une dizaine de milli-Watt, un spectre de plusieurs nanomètres de large, accordable dans une large gamme de longueurs d'onde. On dispose alors a priori d'un outil idéal pour réaliser nos mesures de réflectivité. Ce résultat doit toutefois être tempéré par le fait que l'allure générale du spectre, fortement structurée et parfois instable, peut compliquer la mesure.

### Confrontation des mesures

La figure 3.12 montre un ensemble de spectres de réflectivité réalisés sur des micropiliers de diamètres différents. On notera la bonne qualité des résultats que l'on peut obtenir par cette méthode. Il est intéressant de noter que l'on ne retrouve que la position du mode fondamental, ce qui est attribué au mauvais recouvrement du faisceau gaussien incident avec les modes guidés d'ordres plus élevés du micropilier.

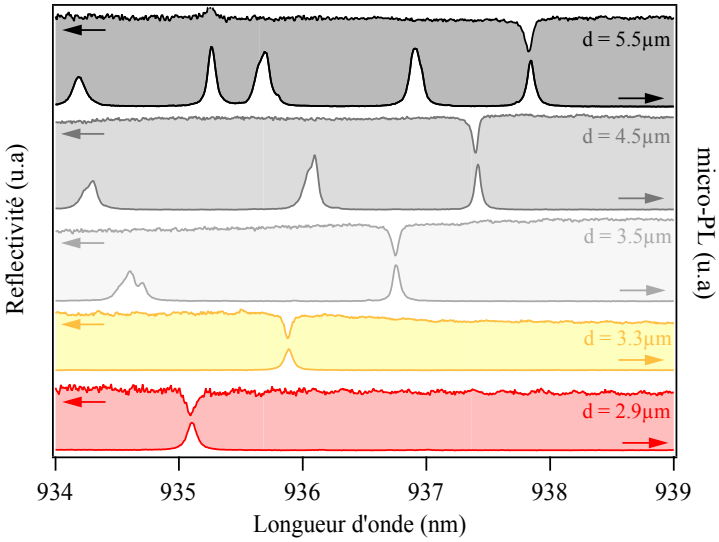


FIGURE 3.12 – Spectres de réflectivité obtenus pour des piliers de 5.5, 4.5, 3.5, 3.1 et 2.9 $\mu m$ et comparés au résultats obtenus en micro-PL. Résultats obtenus à 4 $K$.

On réalise alors la même expérience que précédemment, où le facteur de qualité apparent est mesuré en fonction de la puissance et de la température. La figure 3.13 reprend les données précédentes, auxquelles on a ajouté le résultat des mesures en réflectivité. Les valeurs indiquées sont obtenues au moyen d'un ajustement lorentzien du spectre de réflectivité. Les barres d'erreurs relativement importantes (10%) correspondent à l'incertitude liée à l'ajustement, notamment due à une légère asymétrie spectrale entre les valeurs de réflectivité mesurées de part et d'autre du mode de cavité.

L'insert montre que la puissance du laser incident n'a pas d'effet notable sur la mesure, ce qui indique que le seuil de transparence est déjà atteint. On constate également une augmentation de $Q$ avec la température, qui confirme les résultats obtenus en micro-PL. Il serait intéressant de mener une analyse quantitative de l'influence de la température sur la cavité à miroir de Bragg pour voir s'il est possible d'expliquer cet effet par la dilatation thermique des matériaux ou leur changement d'indice.

Enfin, on peut constater une erreur systématique d'environ 10% entre la valeur du facteur de qualité mesurée en micro-PL et celle obtenue par réflectivité. Ainsi à une valeur de $Q$ mesurée en micro-PL correspond une valeur systématiquement supérieure de $Q$ mesurée en réflectivité. Des expériences complémentaires sont ici nécessaires pour déterminer l'origine de cette différence. Il serait par exemple intéressant de comparer des mesures de micro-PL réalisées

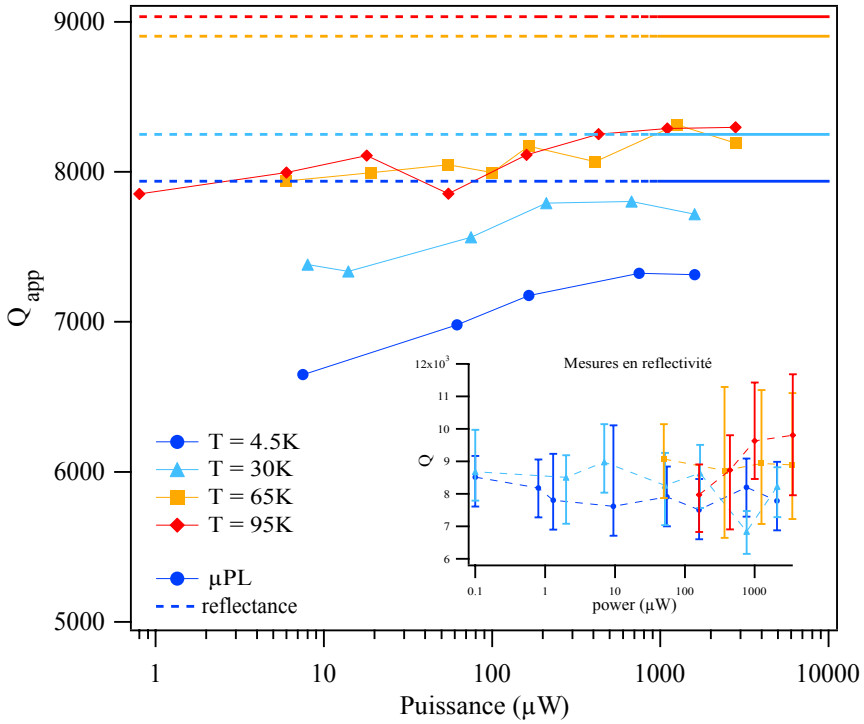


FIGURE 3.13 – Evolution du facteur de qualité en fonction de la puissance de pompe pour quatre températures. Les courbes en traits plein correspondent aux mesures effectuées à partir des spectres de micro-PL. Les courbes en pointillés correspondent à la valeur moyenne mesurée en réflectivité. L'encadré montre que les mesures de réflectivité ne dépendent pas de la puissance.

pour différentes longueur d'onde d'excitation afin de déterminer par exemple l'influence de la couche de mouillage.

Nous utiliserons donc dans la suite les valeurs de $Q$ mesurées à partir des spectres de micro-PL à forte puissance et à $4K$, en gardant à l'esprit la possibilité d'une erreur de mesure aussi grande que 10% de la valeur indiquée.

### 3.3.3 Mesure du facteur de qualité en fonction du diamètre

Pour finir, on rapporte la mesure du facteur de qualité sur un ensemble de micropiliers, en fonction de leur diamètre. Ces résultats sont rassemblés dans la figure 3.14 et nous permettent d'extraire le facteur de qualité de la cavité planaire $Q_0 \sim 14000$ (voir section 2.3.4). Si l'allure générale est la même qu'à la figure 2.18, on peut toutefois remarquer un comportement oscillatoire qui n'est pas décrit par le modèle présenté à la section 2.3.4. On constate en effet que dans la région des diamètres compris entre 2 et $4\mu m$ la valeur du facteur de qualité n'augmente pas de manière monotone. Ce phénomène a d'abord été observé sur des piliers de diamètres inférieurs au micron [96], puis plus récemment sur des micropiliers de diamètres plus grands présentant un très haut facteur de qualité [89]. Pour comprendre l'origine de ce phénomène, il faut revenir sur une approximation associée au modèle présenté que nous avons passée sous

silence. En effet, la description analytique de Rivera et.al. suppose qu'à chaque interface du miroir de Bragg, un mode guidé ne se couple qu'à un autre mode guidé du même ordre dans l'autre matériau, ce qui n'est pas rigoureusement exact. On montre alors, qu'en fonction de la taille et du diamètre du pilier, la prise en compte du couplage du mode incident à un ou plusieurs modes d'ordres supérieurs dans un modèle plus complet génère ce type d'oscillations [96, 89].

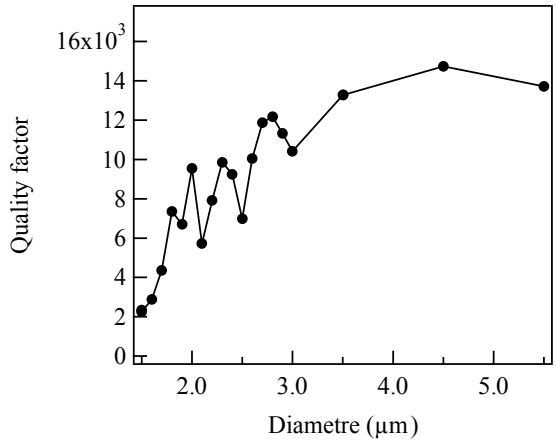


FIGURE 3.14 – Facteur de qualité en fonction du diamètre du micropilier (mesuré par micro-PL).

## 3.4 Avant-propos concernant les chapitres 4 et 5

Les deux chapitres suivants sont consacrés à la mesure du facteur de Purcell. La méthode historique correspond à celle présentée dans le chapitre 5 où la dynamique du système est observée dans une expérience résolue en temps [3, 28]. Le chapitre 4 aborde de nouvelles stratégies qui ont été proposées ces dernières années pour obtenir une évaluation du facteur de Purcell à partir d'une expérience de micro-PL sous excitation continue [79, 97, 94]. Comme il sera remarqué, ces techniques sont intéressantes à plus d'un titre, et notamment pour la simple raison qu'elles ne nécessitent pas la mise en place d'un montage spécifique coûteux.

Cette multiplicité des approches soulève donc la question de l'adéquation de ces méthodes entre elles. L'objectif de ces deux parties est donc de répondre à cette question. Nous nous proposons donc ici d'examiner chacune de ces méthodes et d'en comparer les résultats. Nous chercherons également à déterminer les points forts et les points faibles de chacune et à déterminer les limites dans lesquelles leur utilisation est pertinente.

L'ensemble des méthodes présentées ici repose sur la comparaison des propriétés d'émission d'une boîte quantique dans les situations résonnante et non résonnante. Cette approche est valable dans le cas des micropiliers, pour lesquels l'émission dans les modes de pertes (émission non-résonnante) est comparable à celle dans la matrice solide ($\gamma \simeq \Gamma_{libre}$, voir section 2.3.4).

Dans ce cas, nous mesurons donc bien des exaltations du taux d'émission au sens de Purcell. Dans tout autre système où cette condition n'est pas vérifiée, le facteur de Purcell ne peut pas être estimé aussi simplement.

Enfin, nous rappelons que la grandeur mesurée $F$, correspond à l'exaltation du taux d'émission pour une boîte quantique étant donné son couplage spatial avec le mode et sa largeur spectrale. Dans le cas d'une boîte quantique infiniment fine et au ventre du mode de la cavité, on a $F \rightarrow F_p$

# Chapitre 4

# Mesure de l'effet Purcell sous excitation continue

## Contents


**4.1 Manifestation de l'effet Purcell dans une expérience typique de photoluminescence en continu . . . . . 52**

4.1.1 Approche qualitative . . . . . 52

4.1.2 Modélisation d'une boîte quantique en cavité . . . . . 52

4.1.3 Ajustement des données . . . . . 55

**4.2 Mesures des taux de pompage à saturation . . . . . 57**

**4.3 Mesures des intensités de saturation . . . . . 60**

**4.4 Intensité de photoluminescence à puissance de pompe fixée . . . . 63**

**4.5 Evaluation du rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ . . . . . 65**

**4.6 Conclusion . . . . . 66**


Dans une expérience sous excitation continue, seuls les états stationnaires du système sont accessibles. Nous montrerons dans ce chapitre comment ces états peuvent être modifiés lorsqu'une boîte quantique est couplée à une cavité dans le régime de Purcell. Nous verrons qu'il est possible, à partir de l'analyse de la modification du régime de saturation, d'obtenir des informations quantitatives sur l'importance de l'effet Purcell. Nous montrerons enfin que l'effet de la redirection géométrique peut être mis en évidence dans des expériences sous faible excitation, et qu'il est possible de quantifier les efficacités de collection associées aux différents modes d'échappement des photons.

## 4.1 Manifestation de l'effet Purcell dans une expérience typique de photoluminescence en continu

### 4.1.1 Approche qualitative

Pour se faire une idée intuitive de la signature de l'effet Purcell lors d'une expérience en continu, considérons le cas simple d'une boîte quantique réduite à un système à deux niveaux (ce schéma sera complété par la suite). Dans ce cas, la saturation du système est atteinte lorsque le taux de pompage égale le taux d'émission spontanée : la puissance rayonnée est alors donnée par le taux d'émission spontanée. Lorsque la transition est résonnante avec le mode de cavité, ce taux d'émission est exalté sous l'effet Purcell. A la fois l'intensité rayonnée à saturation et la puissance requise pour saturer le système augmentent donc par rapport au cas désaccordé. D'autre part, nous avons vu que l'effet Purcell a également pour effet de rediriger l'émission de la boîte quantique dans le mode de la cavité. Celui-ci étant, dans notre cas, mieux collecté que les modes de pertes, l'efficacité de collection est également améliorée dans le cas résonnant.

Ainsi, lors d'une expérience en continu, on observe, au fur que l'on s'approche de la résonnance, à la fois une augmentation de la puissance requise pour saturer le système, et une augmentation de l'intensité détectée, dont l'origine est à la fois dynamique et géométrique.

### 4.1.2 Modélisation d'une boîte quantique en cavité

#### Mode de cavité et modes de pertes

Le système peut être schématisé de la manière suivante (voir figure 4.1). Une boîte quantique est placée dans une cavité dont la résonance est proche de la transition excitonique (cf $X_a$ à la figure 3.7). La boîte quantique est pompée de manière non résonnante à un taux $r$ puis se désexcite en émettant des photons via deux canaux, l'un correspondant au mode de la cavité, l'autre à celui des modes de pertes. A grand désaccord, l'émission se fait essentiellement via les modes de pertes. Au contraire, plus on se rapproche de la résonance, plus l'émission se fait via le mode de la cavité, et ce d'autant plus que le facteur de Purcell est important.

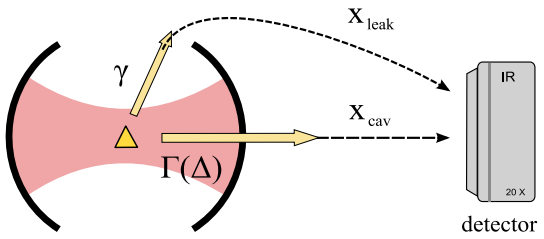


FIGURE 4.1 – La boîte quantique (représentée par le triangle jaune) peut se désexciter en émettant un photon soit par le mode de cavité (avec un taux $\Gamma$), soit par les modes de pertes (avec le taux $\gamma$). Ces deux canaux ont des probabilités de détection notées respectivement $\chi_{cav}$ et $\chi_{leak}$.

La puissance rayonnée est collectée par notre objectif avec une efficacité qui dépend du diagramme en champ lointain de chaque mode. On note donc $\chi_{leak}$ et $\chi_{cav}$ les efficacités de collection associées aux modes de pertes et de cavité respectivement. Dans le cas des micropiliers, l'émission est fortement directive et on s'attend à ce que $\chi_{cav}$ soit très supérieure à $\chi_{leak}$. Au contraire, dans les cristaux photoniques, le rayonnement n'est pas nécessairement optimisé en $\Gamma$ (ie dans la direction normale au plan), et le couplage du mode de cavité à l'objectif de microscope est alors nettement moins bon.

Dans tous les cas, l'intensité totale collectée correspondant à la recombinaison d'un exciton s'écrit, pour un désaccord $\Delta = \omega - \omega_0$ entre la boîte quantique et le mode de cavité, et un taux de pompage $r$ donnés

$$I_{X,det}(\Delta, r) = I_X^{leak}(\Delta, r) + I_X^{cav}(\Delta, r), \tag{4.1}$$

où

$$I_X^{leak}(\Delta, r) = \chi_{leak}\gamma p_X(\Delta, r) \tag{4.2}$$

est le taux de photons émis dans les modes de pertes et

$$I_X^{cav}(\Delta, r) = \chi_{cav}\Gamma(\Delta)p_X(\Delta, r) \tag{4.3}$$

est le taux de photons émis dans le mode de cavité. $p_X$ est la population du niveau excitonique, $\Gamma(\Delta)$ (resp. $\gamma$) le taux d'émission de la boîte quantique dans le mode de cavité (resp. pertes), et $\chi_{cav}$ (resp. $\chi_{leak}$) l'efficacité de collection du mode de cavité (resp. pertes).
En remplaçant dans l'équation 4.1, on obtient

$$I_{X,det}(\Delta, r) = (\chi_{leak}\gamma + \chi_{cav}\Gamma(\Delta))p_X(\Delta, r) \tag{4.4}$$

**Population des états stationnaires**

Afin de prendre en compte la possibilité de peupler des états excités, nous modélisons notre boîte quantique par un système à trois niveaux, comprenant l'état fondamental $|G\rangle$, l'état excitonique $|X\rangle$ et l'état bi-excitonique $|XX\rangle$. Nous verrons que ce schéma est suffisant pour décrire nos expériences dans le régime de puissances utilisé. Le système est décrit schématiquement à la figure 4.2, avec $\gamma$ et $\gamma_{XX}$ les taux d'émission de l'exciton et du bi-exciton dans les modes de pertes et $\Gamma(\Delta)$ le taux d'émission de l'exciton via le mode de cavité en fonction du désaccord. En introduisant le facteur d'exaltation $F$ et la lorentzienne $\mathcal{L}(\Delta) = \frac{1}{1+\Delta^2/\kappa^2}$, de largeur $\kappa$ correspondant au profil de la cavité, on peut exprimer ce dernier de la façon suivante [1] :

$$\Gamma(\Delta) = \gamma F \mathcal{L}(\Delta) \tag{4.5}$$

On peut alors écrire l'évolution des populations des états fondamental, excitonique et biexcitonique (respectivement $p_G$, $p_X$ et $p_{XX}$)

$$\dot{p}_{XX} = rp_X - \gamma_{XX}p_{XX} \tag{4.6}$$

$$\dot{p}_X = \gamma_{XX}p_{XX} + rp_G - rp_X - \gamma_X p_X \tag{4.7}$$

$$\dot{p}_G = \gamma_X p_X - rp_G \tag{4.8}$$

1. On rappelle que $\Gamma_{libre} = \gamma$ (voir section 2.3.4)

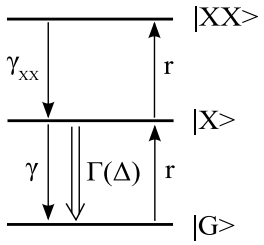


FIGURE 4.2 – Système à trois niveaux incluant l'exciton $|X\rangle$ et le biexciton $|XX\rangle$. $r$ représente le pompage, et $\gamma_{XX}$ le taux d'émission du biexciton.

où $\gamma_X = \gamma + \Gamma(\Delta)$
On résout ces équations dans le régime stationnaire d'où l'on extrait la population du niveau excitonique en fonction du taux de pompage :

$$p_X(\Delta, r) = \frac{1}{1 + \frac{r}{\gamma_{XX}} + \frac{\gamma + \Gamma(\Delta)}{r}} \tag{4.9}$$

Comme on peut le voir sur la figure cette population suit une évolution linéaire à faible puissance, sature pour une puissance critique, puis diminue aux fortes puissances, au fur et à mesure que l'on charge le niveau bi-excitonique, pour finalement tendre vers zéro.

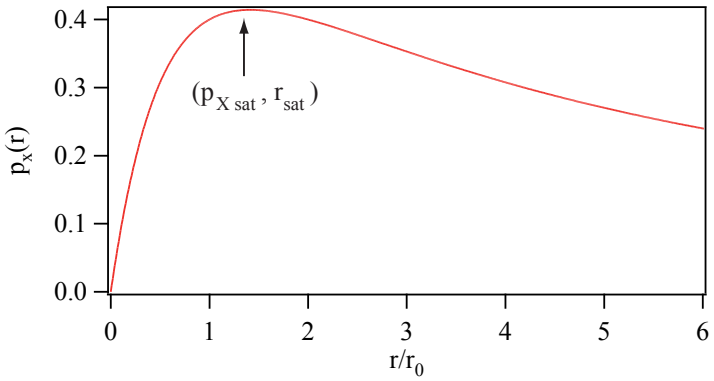


FIGURE 4.3 – Evolution de la population du niveau excitonique en fonction du taux de pompage. Cette population sature pour un taux de pompage $r_{sat}$, pour lequel l'intensité rayonnée est maximale.

### 4.1.3 Ajustement des données

#### Fonction d'ajustement

Pour obtenir l'intensité de luminescence de la raie excitonique, on veut séparer les photons de cette transition du reste de la luminescence. Une idée naturelle consiste donc à ajuster la raie de la boîte quantique au moyen d'une lorentzienne, de largeur $\gamma_X$. Or récemment, il a été montré qu'une boîte quantique peut alimenter le mode de cavité, même lorsqu'elle est désaccordée [98, 47], suggérant la nécessité d'un ajustement plus fin. On observe effectivement, sur l'ensemble de nos spectres (voir figures 3.7, 3.9 et 4.5), la présence de photons émis à la longueur d'onde de la cavité, même lorsqu'aucune boîte n'est spectralement accordée. Nous verrons (voir chapitre 5) que dans notre cas, cette luminescence est due à un ensemble d'émetteurs désaccordés et que l'influence de la boîte quantique d'intérêt est négligeable. On peut cependant déjà pressentir ce résultat à partir des remarques suivantes. D'une part on peut constater sur la figure 3.9 que l'intensité dans le mode de la cavité n'est pas corrélée à la position spectrale de la boîte quantique. Ainsi pour un même désaccord absolu, l'intensité dans le mode n'est pas la même selon que la boîte est à plus grande ou plus petite longueur d'onde, ce qui semble indiquer la présence d'émetteurs additionnels. Ce résultat est cohérent avec la position de la raie inhomogène vers les plus basses longueurs d'onde, qui se rapproche donc lorsque la température augmente. D'autre part, les résultats évoqués [98, 47] décrivent le comportement d'une boîte unique en couplage fort avec la cavité dans le premier cas, et d'une boîte de largeur spectrale supérieure à celle de la cavité dans le second. Notre boîte quantique n'entrant pas dans le cadre de ces descriptions, nous avons choisi d'adopter un modèle plus simple en négligeant la fraction éventuelle des photons émis à la longueur d'onde de la cavité. On pourra cependant noter les tentatives récentes pour décrire un spectre de photoluminescence en tenant compte de ces mécanismes [99, 100], qui présentent pour l'instant toutes des limites importantes.

La fonction d'ajustement que nous avons utilisé est donc la suivante, qui nous permet de distinguer la boîte quantique du mode de cavité, même dans les cas très proches de la résonance.

$$I(\omega) = I_X(\omega) + I_{cav}(\omega) \tag{4.10}$$

où $I_X(\omega)$ et $I_{cav}(\omega)$ sont deux lorentziennes de largeurs respectives $\gamma_X$ et $\kappa$ décrivant les raies de la boîte quantique et du mode de cavité. Plus précisément,

$$I_X(\omega) = \frac{2A_1}{\pi\gamma_X}\frac{1}{1+4\frac{(\omega-\omega_a)^2}{\gamma_X^2}} \tag{4.11}$$

et

$$I_{cav}(\omega) = \frac{2A_2}{\pi\kappa_0}\frac{1}{1+4\frac{(\omega-\omega_0)^2}{\kappa^2}} \tag{4.12}$$

Il y a en tout six variables : la position spectrale des deux raies $\omega_a$ et $\omega_0$, leur largeurs $\gamma_X$ et $\kappa_0$, et enfin leurs aires $A_1$ et $A_2$, qui correspondent au nombre de photons émis par unité de temps, à chacune des longueurs d'onde, et constituent les véritables paramètres d'ajustement.

Les positions spectrales sont facilement repérables sur les spectres de PL, et fixées à $\pm 0.5$ *pixel*. Dans les cas plus confus où la boîte quantique est proche de la résonance ($\sim 19$ K), on utilise une interpolation à partir de la courbe 4.4.

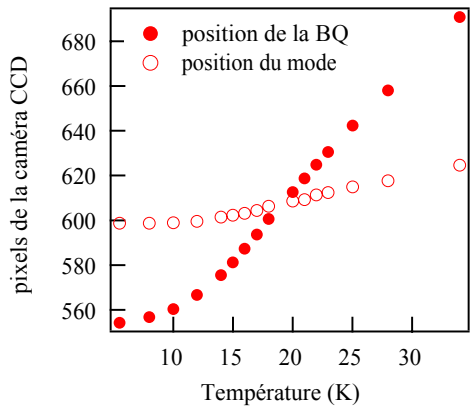


FIGURE 4.4 – Evolution des longueurs d'onde d'émission de la boîte quantique et du mode de cavité en fonction de la température. Les valeurs proches de la résonance ($T \sim 19$ K) sont obtenues en interpolant le reste de la courbe.

Le cas des largeurs est plus sensible. D'une part, parce qu'à 4 $K$ la largeur de la raie excitonique est proche voire inférieure à la résolution de notre montage, et d'autre part car puissance et température modifient à la fois le taux d'émission de la boîte quantique et le facteur de qualité mesuré de la cavité. On autorise donc un écart de $\pm 2$ *pixels* et l'on vérifie après coup la progression cohérente des valeurs obtenues.

Enfin, la dernière difficulté apparaît dans les situations proches de la résonance pour lesquelles les raies se mélangent (voir fig 4.5b) donnant aux paramètres du fit une plus grande latitude pour converger.

La figure 4.5 montre un exemple d'ajustements réalisés pour deux montées en puissance, a) dans le cas d'une boîte fortement désaccordée ($\Delta = -2.9\kappa$), et b) dans le cas où la même boîte est cette fois presque à résonance ($\Delta = -0.4\kappa$). Les spectres sont artificiellement décalés sur l'axe vertical pour augmenter la lisibilité. Dans le premier cas, la boîte quantique apparaît sous la forme d'une raie fine, dont l'intensité augmente avec la puissance de pompe. Dans le second cas, la boîte quantique est cette fois dans le mode de cavité. On observe qu'à faible puissance le mode de cavité est presque vide, tandis qu'aux fortes puissances il finit par dominer le spectre de PL.

### Résultats

L'ajustement obtenu à partir des courbes précédentes nous permet d'extraire l'intensité de la raie excitonique en fonction de la puissance pour différentes valeurs de désaccords, à partir

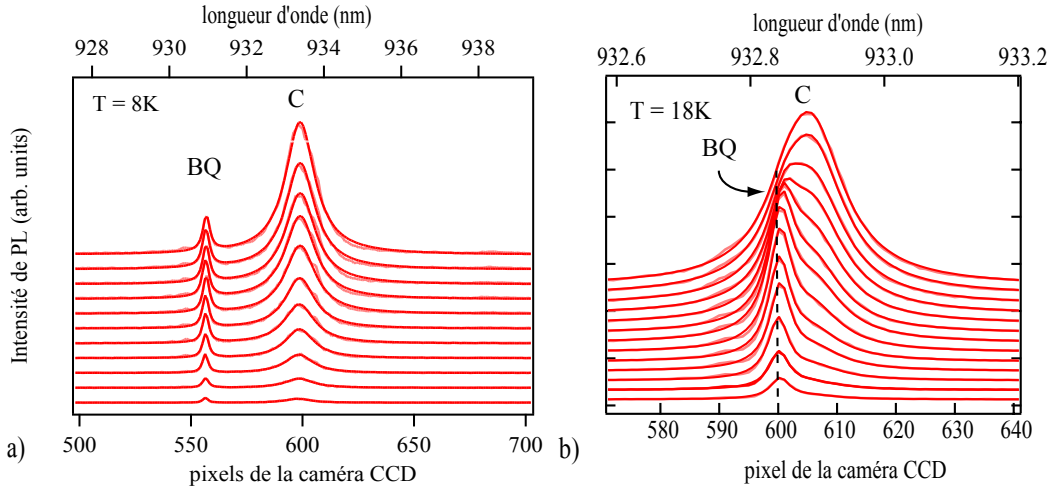


FIGURE 4.5 – Spectres de PL obtenus pour des puissances comprises entre a) 18 et 293$\mu$W à $T = 8$K et b) 23 et 425$\mu$W à $T = 18$K. Les spectres (rouge clair) sont approximés par un ajustement double lorentzien (rouge) et décalés artificiellement pour une meilleure lisibilité

de quoi on construit les courbes de saturations présentées à la figure 4.6. Ces courbes sont elles-mêmes ajustées à partir de l'équation 4.9.

Comme attendu, on observe une augmentation de la puissance requise pour saturer le système, ainsi que de l'intensité rayonnée à saturation (points noirs). Ces deux aspects seront abordés dans les parties 4.2 et 4.3. Dans la partie 4.4, nous montrerons qu'il est possible de mesurer la fraction $\beta(\Delta)$ des photons émis dans le mode de cavité à partir des "tranches" repérées par les droites verticales orange (30 $\mu W$) et verte (300 $\mu W$). Enfin, nous utiliserons les points repérés par les cercles ouverts pour évaluer le rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ (voir section 4.5).

## 4.2 Mesures des taux de pompage à saturation

Dans la première méthode, le facteur de Purcell est extrait de la mesure des taux de pompage nécessaires pour saturer le système aux différents désaccords. Cette méthode a été proposée à la fin des années 90 et a depuis été largement utilisée dans le cas des micropiliers [101], des microdisques [101], et des cristaux photoniques [73].

L'évolution du taux de pompage à saturation en fonction du désaccord se déduit de l'expression 4.9 en écrivant

$$\frac{dp_X}{dr}(\Delta, r^{sat}) = 0 \tag{4.13}$$

ce qui donne

$$r^{sat} = \sqrt{\gamma_{XX}\gamma_X} = \sqrt{\gamma_{XX}(\gamma + \Gamma(\Delta))} \tag{4.14}$$

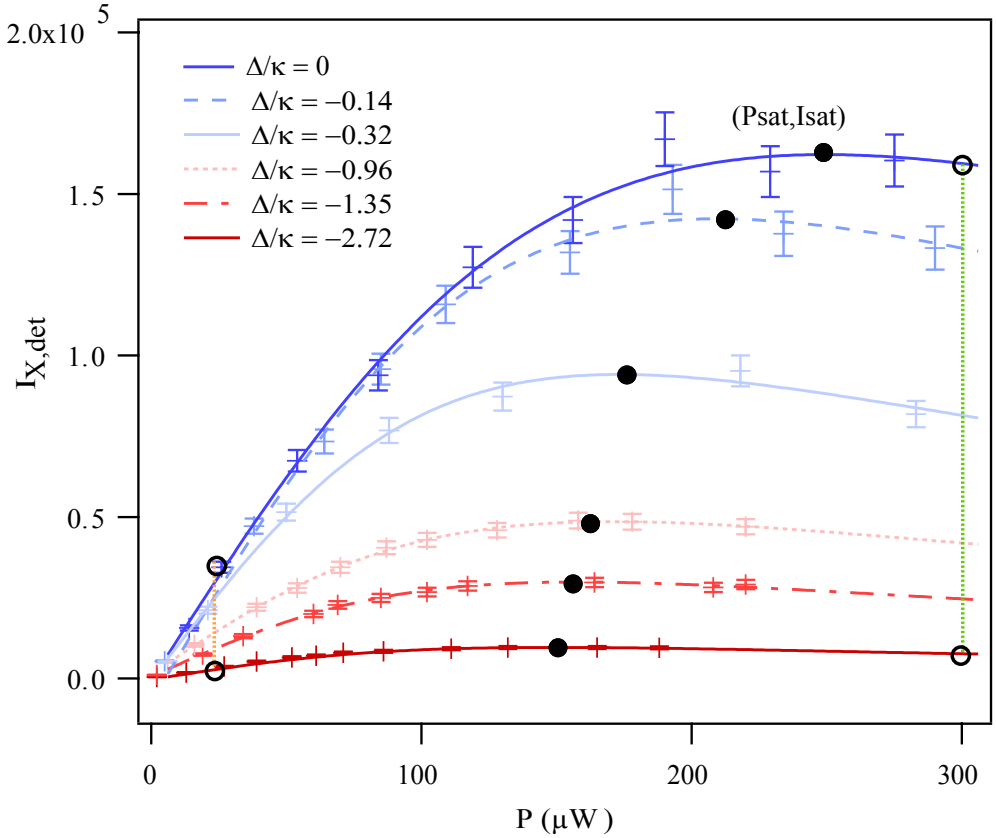


FIGURE 4.6 – Intensité de photoluminescence (I) en fonction de la puissance de pompe (P) pour différent désaccords. Les cercles pleins (noir) indiquent les intensités de saturation $I_{sat}$ et puissance de pompe correspondantes $P_{sat}$ (voir sections 4.2 et 4.3). Les cercles ouverts sont utilisés pour le calcul de $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ (section 4.5), et les tranches verticales pour l'évaluation de $\beta$ (section 4.4).

En remplaçant $\Gamma(\Delta)$ par l'expression 4.5 on trouve finalement

$$r^{sat}(\Delta) \propto \sqrt{1 + F\mathcal{L}(\Delta)}. \tag{4.15}$$

La figure 4.7 représente les puissances de saturation $P_{sat}$ en fonction du désaccord $\Delta$ entre notre boîte quantique et la cavité. Plusieurs choses sont à noter. D'une part, et cela correspond au résultat attendu, on observe bien une augmentation de $P_{sat}$ à la résonnance, qui compense l'augmentation du taux d'émission spontanée. En revanche, la courbe présente une nette dissymétrie qui n'est pas reliée à la présence de la cavité.

Pour comprendre ce second point, on trace la même courbe en fonction, cette fois, de la température, ainsi que les points de saturations relevés sur une seconde raie excitonique qui reste désaccordée du mode de cavité (voir $X_b$ sur les figure 3.7 et 3.9). Si l'on fait abstraction de la cavité, on constate que les deux comportement en température sont très proches (cf ajustement linéaire sur la figure 4.8). Dans les deux cas, plus la température est grande, plus la puissance requise pour saturer le système est petite. Un ajustement linéaire nous permet de mesurer une diminution de la puissance de saturation de 3.5 $\mu$W/K pour la boîte $a$ et de

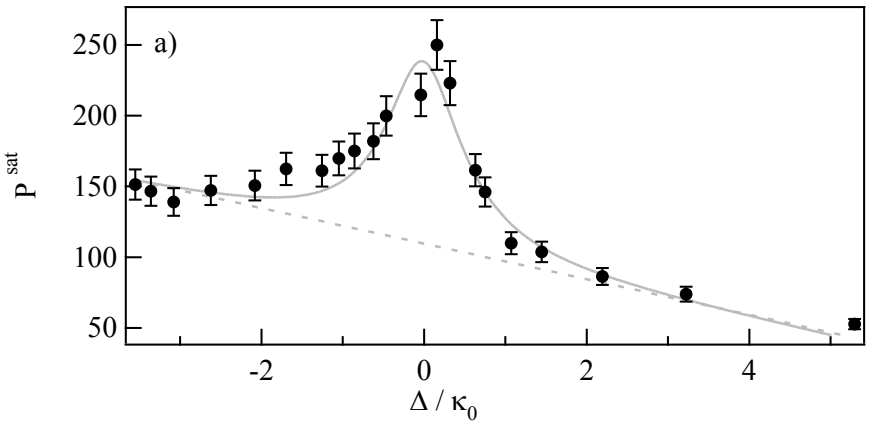


FIGURE 4.7 – Puissance de saturation en fonction du désaccord spectral entre la boîte quantique et la cavité.

3.1 $\mu$W/K pour la boîte $b$.

On rappelle alors que l'excitation est non résonante. L'efficacité du pompage est donc reliée au taux de relaxation des charges créées dans les barrières vers les états de la boîte. Ce que l'on observe ici est une amélioration du processus de relaxation des charges au fur et à mesure que la température augmente, résultat cohérent avec le fait que plus la température est élevée, plus l'importance des mécanismes assistés par phonons (dont la relaxation des charges depuis le continuum de GaAs vers les états de la boîte quantique fait partie) est grande. On pourra aussi noter qu'une variation de température provoque un déplacement spectral de la stop-band du miroir de Bragg, ce qui se traduit par une modification de la réflectivité du miroir à la longueur d'onde d'excitation (voir le spectre de réflectivité théorique de la figure 2.13). En modifiant la température, on modifie l'intensité même du champ à l'intérieur de la cavité.

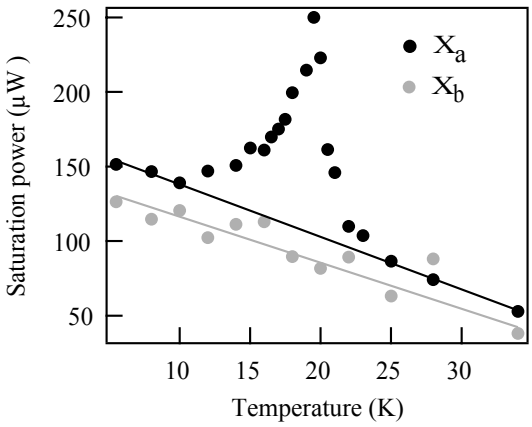


FIGURE 4.8 – Puissance de saturation en fonction de la température pour deux raies excitoniques $a$ et $b$.

Nous n'avons pas mené d'étude détaillée afin de déterminer l'origine exacte de cette mo-

dification [2], mais simplement ajouté une dépendance linéaire dans nos ajustements, qui nous permet d'obtenir la valeur du facteur de Purcell suivante :

$$F = 3.7 \pm 1.0 \tag{4.16}$$

où l'erreur, relativement importante, est due à l'incertitude [3] sur la mesure de $P_{sat}$ (environ 7%).

**Remarque**

Bien souvent, dans ce type de mesures, le facteur de Purcell est extrait de la comparaison entre deux cas limites. En effet,

- si $\Delta \gg \kappa$, ie pour un émetteur suffisament désaccordé, $\mathcal{L}(\Delta) \to 0$
- si $\Delta = 0$, ie à résonance, $\mathcal{L}(\Delta) = 1$

On peut donc a priori extraire le facteur de Purcell du rapport :

$$\frac{r^{sat}(\Delta = 0)}{r^{sat}(\Delta = \infty)} = \sqrt{1 + F} \tag{4.17}$$

Notre exemple montre cependant qu'il faut être extrêmement prudent dans ces situations. En effet, il est nécessaire de s'assurer qu'aucun effet supplémentaire ne s'ajoute, et notamment quand le moyen pour accorder ou désaccorder la boîte quantique est la température, comme c'est le cas ici.

## 4.3 Mesures des intensités de saturation

Une approche similaire à celle évoquée précédemment a été introduite récemment [97, 102] pour des mesures de facteur de Purcell sur micropiliers. On mesure l'évolution non plus des puissances, mais des intensités de PL à saturation (ordonnée des points noirs repérés sur la figure 4.6). L'interprétation du résultat est cependant moins intuitive que dans le cas précédent, comme nous allons le voir.

L'intensité à saturation s'obtient en calculant 4.4 pour $r = r^{sat}$.

$$I^{sat}_{X,det}(\Delta) = I^{sat}_{X,cav}(\Delta) + I^{sat}_{X,leak}(\Delta) \tag{4.18}$$

Elle est composée de deux termes que l'on se propose, dans un premier temps, d'évaluer séparément.
Le premier représente le nombre de photons émis à saturation dans le mode de la cavité et s'écrit

$$I^{sat}_{X,cav}(\Delta) = \chi_{cav}\Gamma(\Delta)p_X(\Delta, r^{sat}) = \chi_{cav}\gamma F\mathcal{L}(\Delta)p_X(\Delta, r^{sat}) \tag{4.19}$$

2. Cette étude peut être réalisée assez simplement, en choisissant une longueur d'onde d'excitation qui maximise le champ dans la cavité à 4 K (longueur d'onde correspondant à un minimum sur le spectre de réflectivité du miroir). Dans ce cas, une augmentation de la température doit diminuer l'efficacité du pompage si cet effet est prépondérant.

3. estimée à partir du meilleur ajustement de $I_{X,det}(r)$

avec

$$p_X(\Delta, r^{sat}) = \frac{1}{1+\sqrt{2+2F\mathcal{L}(\Delta)}} \tag{4.20}$$

d'où finalement

$$I^{sat}_{X,cav}(\Delta) = \frac{\chi_{cav}\gamma F\mathcal{L}(\Delta)}{1+\sqrt{2+2F\mathcal{L}(\Delta)}} \tag{4.21}$$

Pour $F \neq 0$, cette fonction présente un maximum en $\Delta = 0$. Cela correspond bien au résultat attendu : plus on se rapproche de la résonance, plus le nombre de photons émis dans le canal de la cavité augmente.

Le second terme représente lui le nombre de photons émis dans les modes des pertes. On l'évalue de manière similaire et tous calculs faits, on trouve

$$I^{sat}_{X,leak}(\Delta) = \frac{\chi_{leak}\gamma}{1+\sqrt{2+2F\mathcal{L}(\Delta)}} \tag{4.22}$$

La fonction présente cette fois un minimum en $\Delta = 0$ quand $F \neq 0$, qui illustre la redirection géometrique des photons vers le modes de cavité, et se traduit ici par une baisse du nombre de photons émis dans les modes de pertes.

L'intensité totale détectée est donc la somme de ces deux termes et la variation que l'on observe dépend des efficacités de collections $\chi_{cav}$ et $\chi_{leak}$ relatives à chaque canal. La figure 4.9 représente le nombre de photons émis dans chacun de ces canaux ainsi que l'intensité totale collectée pour deux valeurs différentes du rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ et un facteur de Purcell constant $F = 3$. On constate que le résultat est très différent selon que le mode de cavité est bien collecté ($\chi_{cav}/\chi_{leak} = 15$), ou au contraire que son recouvrement avec l'ouverture numérique du détecteur est mauvais ($\chi_{cav}/\chi_{leak} = 0.1$). Ainsi, dans des systèmes où le diagramme d'émission est peu favorable (comme c'est souvent le cas pour les cristaux photoniques), il est donc possible de mesurer une diminution de l'intensité de saturation lorsque l'on se rapproche de la résonance ! Ce résultat surprenant au premier abord doit donc être interprété avec attention.

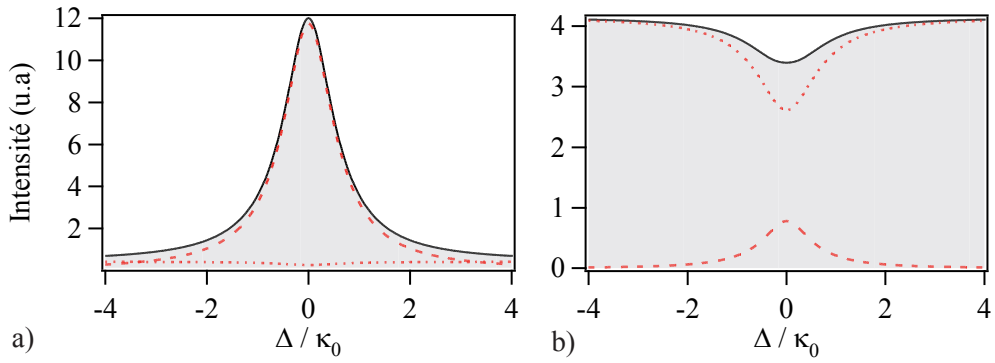


FIGURE 4.9 – Intensité émise par la boîte quantique. En trait noir plein, $I^{sat}_{X,det}$, en tireté rouge $I^{sat}_{X,cav}$, et en pointillé rouge $I^{sat}_{X,leak}$ pour a) $\chi_{cav}/\chi_{leak} = 15$ et b) $\chi_{cav}/\chi_{leak} = 0.1$

Dans le cas des micropiliers, l'émission est très directive et bien collectée et l'équation 4.18 se simplifie pour donner

$$I^{sat}_{X,det}(\Delta) \propto \frac{F\mathcal{L}(\Delta)}{1+\sqrt{2+2F\mathcal{L}(\Delta)}} \tag{4.23}$$

Nous justifierons cette approximation dans la partie 4.4 lorsque nous évaluerons le rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$ pour notre montage.

Les données expérimentales sont présentées à la figure 4.10. Il est possible de donner une justification qualitative de l'approximation précédente à partir de ce résultat. En effet, le rapport entre la valeur maximale d'intensité de saturation et le fond est supérieur à 20, ce qui correspond à une exaltation conséquente et nous indique que nous sommes plutôt dans une situation de type "cavité", c'est à dire où les photons du mode de cavité sont mieux collectés que ceux des pertes. Bien entendu, il faut tenir compte de l'augmentation du taux d'émission pour être tout à fait complet. On pourra cependant comparer ce résultat à nos simulations, qui montrent que pour un rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak} = 1$, c'est à dire pour une situation ou modes de pertes et modes de cavité sont aussi bien colléctés, on retrouve une telle augmentation de l'intensité de saturation à résonance pour un facteur de Purcell de l'ordre de 1000 !

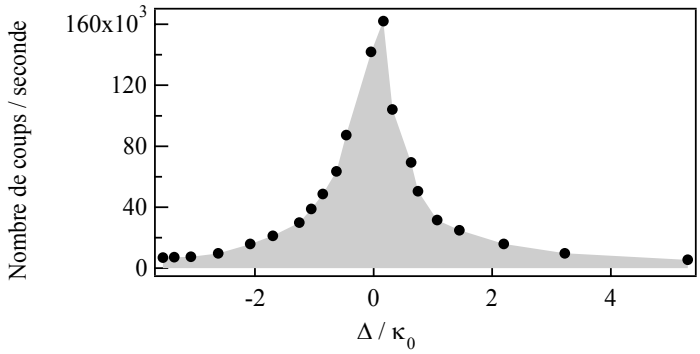


FIGURE 4.10 – Intensité de saturation en fonction du désaccord entre la boîte quantique et la cavité.

La figure 4.11 reprend les mêmes données, qui sont cette fois normalisées et auxquelles on retranche le fond afin de simplifier l'ajustement théorique. Celui-ci est obtenu à partir de l'équation 4.23, où $F$ est l'unique paramètre libre. On trouve

$$F = 2.4 \pm 1.2 \tag{4.24}$$

Cette méthode génère une erreur importante (env. 50%) qui n'est pas entièrement expliquée par le manque de précision associé à l'évaluation de $I^{sat}$. En effet, cette erreur est de 5%, ce qui conduit, dans la limite des grands facteurs de Purcell, où le calcul est simple, à une erreur maximum de 25% sur la mesure de $F$. En revanche, on constate clairement une forte dépendance de l'ajustement à la valeur du facteur de qualité de la cavité que l'on choisit (valeur de $\kappa$ dans $\mathcal{L}(\Delta)$). Lorsque l'on *impose* $Q = 7500$, l'ajustement converge et rend les valeurs annoncées plus haut. Au contraire, si l'on autorise une variation de $Q$ d'une dizaine de pourcents, comme

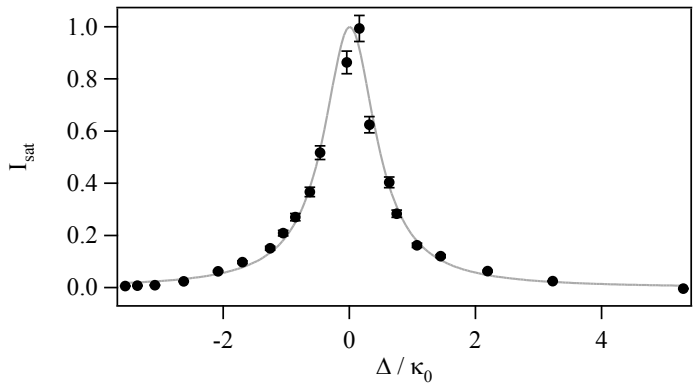


FIGURE 4.11 – Intensité de saturation normalisée en fonction du désaccord.

suggéré par les résultats de la partie 3.3, on obtient des résultats absurdes qui peuvent dépasser la valeur théorique calculée.

## 4.4 Intensité de photoluminescence à puissance de pompe fixée

On se propose, dans cette partie, de calculer le facteur de Purcell à partir d'une méthode originale, qui consiste à évaluer la largeur de la courbe donnant l'intensité de la boîte quantique en fonction du désaccord. Nous allons voir qu'il est possible de distinguer deux régimes de puissance pour lesquels le comportement de la boîte quantique est différent, et à partir desquels il est possible de quantifier l'exaltation de l'émission spontanée.

### Régime des faibles puissances

Dans le régime des faibles puissances, c'est à dire pour $r \ll \gamma + \Gamma(\Delta), \forall\Delta$, le nombre de photons émis est fixé par le taux de pompage. En d'autres termes, le système a le temps de relaxer entre chaque excitation et l'on observe une série d'émissions spontanées réparties dans les modes de cavité et de pertes. La puissance rayonnée dans le mode de cavité reflète donc la probabilité d'émettre un photon dans ce mode, soit $\frac{\Gamma(\Delta)}{\gamma+\Gamma(\Delta)} \equiv \beta(\Delta)$.
A partir de l'équation 4.9, cela donne :

$$p_X(\Delta, r) = \frac{r}{\gamma + \Gamma(\Delta)} \tag{4.25}$$

d'où

$$I_{X,det} = (\chi_{leak} + \chi_{cav} F\mathcal{L}(\Delta))\frac{\gamma}{1 + F\mathcal{L}(\Delta)} \tag{4.26}$$

qui se simplifie, pour $\chi_{leak} \ll \chi_{cav}$, en

$$I_{X,det}(\Delta) \propto \frac{F\mathcal{L}(\Delta)}{1 + F\mathcal{L}(\Delta)} \equiv \beta(\Delta) \tag{4.27}$$

L'allure de la fonction est donc une lorentzienne, dont la largeur est augmentée d'un facteur $\sqrt{1+F}$ par rapport à celle de la cavité.

**Régime des hautes puissances**

Pour des puissances supérieures à la saturation, ie quand $r \gg \gamma + \Gamma(\Delta), \forall\Delta$, le système est maintenu dans l'état excité. La puissance rayonnée dans le mode de cavité est cette fois proportionnelle au taux d'émission $\Gamma(\Delta)$ dans le mode. On ecrit

$$p_X(\Delta, r) = \frac{\gamma_{XX}}{r} \tag{4.28}$$

d'où

$$I_{X,det}(\Delta) \propto F\mathcal{L}(\Delta) \tag{4.29}$$

La largeur mesurée correspond donc cette fois à la largeur de la cavité.

Expérimentalement, les données sont obtenues à partir des "tranches" verticales orange et verte de la figure 4.6 et sont représentées à la figure 4.12.

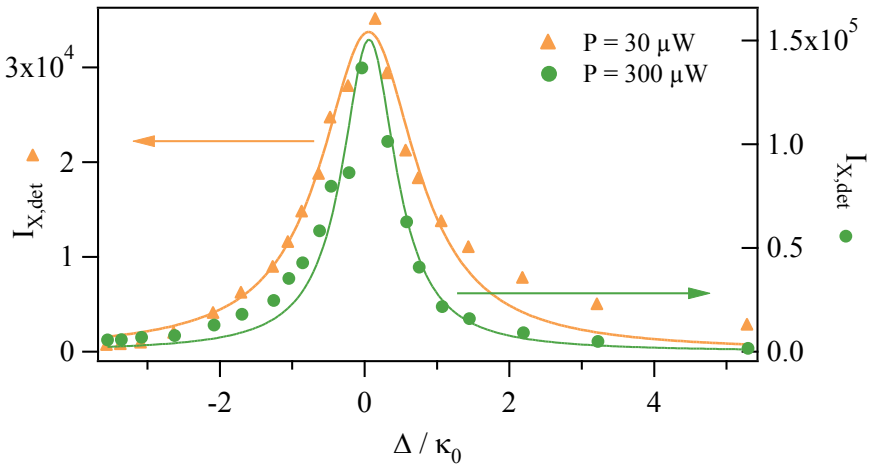


FIGURE 4.12 – Intensité de PL en fonction de la température pour deux puissances de pompe différentes. Les points ronds (respectivement triangulaires) sont obtenus pour une puissance supérieure (inférieure) à la saturation. A faible puissance, le profil est donné par la fonction $\beta(\Delta)$.

La figure 4.13 rassemble les résultats obtenus pour plusieurs valeurs de puissances, où les largeurs sont normalisées par la largeur $\kappa$ de la cavité, mesurée sur un spectre de micro-PL à forte puissance. Du rapport des valeurs obtenues à faibles et fortes puissances, on déduit la valeur du facteur de Purcell

$$F = 3.2 \pm 0.9 \tag{4.30}$$

Cette valeur coïncide dans la limite des barres d'erreur avec les mesures réalisées jusqu'à maintenant. L'incertitude élevée est attribuée à l'erreur sur les mesures d'intensité.

On pourra remarquer que la largeur mesurée à haute puissance est inférieure d'environ 10% à la largeur $\kappa$ de la cavité prise comme référence (mesure réalisée en micro-PL, voir section 3.3), ce qui dépasse légèrement la barre d'erreur indiquée. L'absorption de la boîte quantique ne peut pas seule expliquer cet écart. En revanche, on souligne ici que la mesure effectuée à $300\mu$W

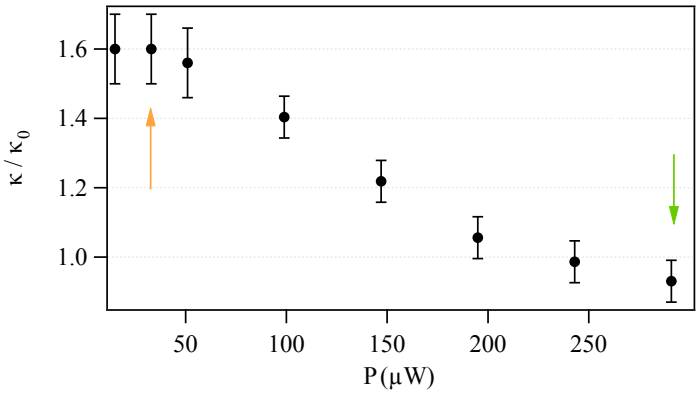


FIGURE 4.13 – Largeur spectrale mesurée à mi-hauteur (FWHM) en fonction de la puissance d'excitation. Le résultat est normalisé à la largeur de cavité $\kappa$. Les flèches correspondent aux courbes de la figure 4.12.

correspond à la limite de notre modèle d'évolution en puissance. En effet, celui-ci ne prend en compte que les effets du biexciton et néglige tout état de charge supérieur. Pour mesurer une valeur de $Q$ fidèle et éliminer cette source d'erreur, il est donc recommandé d'utiliser un modèle plus fin comprenant plus de niveaux. Enfin, ce résultat reste contenu dans l'incertitude autour de la mesure de $Q$ évoquée à la partie 3.3.

## 4.5 Evaluation du rapport $\chi_{cav}/\chi_{leak}$

On se propose dans cette partie de revenir sur l'hypothèse concernant les efficacités de collection relatives à chaque type de mode. En effet, dans les deux sections précédentes, nous avons supposé que le recouvrement entre le diagramme d'émission du mode de cavité et notre système de collection était très supérieur à celui des modes de pertes, dans le cas d'un micropilier.

Pour cela, on définit le rapport $\epsilon(\Delta, r)$ d'après

$$\epsilon(\Delta, r) = \frac{I_{X,det}(0,r)}{I_{X,det}(\Delta)} = \frac{p_X(0,r)}{p_X(\Delta,r)} \frac{\chi_{leak} + \chi_{cav}F}{\chi_{leak} + \chi_{cav}F\mathcal{L}(\Delta)} = \frac{p_X(0,r)}{p_X(\Delta,r)}\alpha(\Delta) \tag{4.31}$$

où $\alpha(\Delta) \equiv \frac{\chi_{leak}+\chi_{cav}F}{\chi_{leak}+\chi_{cav}F\mathcal{L}(\Delta)}$ dépend des propriétés de redirection de la cavité. On peut à nouveau dégager deux cas limites, à basse, et haute puissances.
En dessous de la saturation, on a

$$\epsilon_{below}(\Delta) = \alpha(\Delta)\frac{1 + F\mathcal{L}(\Delta)}{1 + F} \tag{4.32}$$

tandis qu'au dessus,

$$\epsilon_{above}(\Delta) = \alpha(\Delta) \tag{4.33}$$

En faisant le rapport entre ces deux quantités, $\alpha(\Delta)$ se simplifie, ce qui permet d'obtenir une nouvelle valeur du facteur de Purcell. On trouve, à partir des points repérés par les cercles

vides sur la figure 4.6, et en utilisant une mesure indépendante de la largeur de cavité $\kappa$

$$F = 2.5 \pm 0.5 \tag{4.34}$$

En introduisant cette valeur dans l'expression de $\alpha(\Delta)$, on déduit le rapport des efficacités de collection

$$\chi_{cav}/\chi_{leak} = 15 \pm 4.5 \tag{4.35}$$

confirmant ainsi que la cavité est bien mieux couplée au détecteur que les modes de pertes.

Ce résultat ne peut bien évidemment pas être généralisé puisqu'il dépend à la fois du diagramme d'émission du mode de cavité (donc de son diamètre, de la qualité de la gravure...) et du schéma de collection propre à chaque expérience. On pourra cependant retenir que l'approximation $\chi_{cav}/\chi_{leak} \gg 1$ est raisonnable dans le cas de micropiliers étudiés dans les géomtries typiques, où la collecte se fait normalement au plan de l'échantillon. En revanche ce résultat ne s'applique pas nécessairement aux cristaux photoniques, qui nécessitent donc un traitement plus attentif.

## 4.6 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre quatre méthodes permettant de mesurer le facteur de Purcell à partir d'une expérience de micro-PL en continu. L'ensemble des mesures converge vers une valeur du facteur de Purcell $F_p = 3$, ce qui confirme la validité de chacune des approches.

On notera cependant qu'il nous paraît difficile d'obtenir une précision supérieure à 30% à partir de ce type de mesures, ce qui n'a pas été clairement établi jusqu'à aujourd'hui. Cela est dû à une incertitude de quelques pourcents sur la mesure des puissances d'excitation et des intensités rayonnées.

D'autre part, nous soulignons que, en dehors du cas de l'étude des puissances de saturation, une description précise du spectre de luminescence est nécessaire. Nous avons ici fait l'hypothèse que le spectre d'émission de la boîte quantique se limite à une lorentzienne centrée sur sa fréquence propre, ce qui constitue une approximation largement répandue. Cependant, il a été montré que le spectre d'émission d'une boîte quantique en cavité est plus complexe que cela et dépend notamment fortement de son couplage avec la matrice environnante [47]. Dans notre cas, nous estimons que l'erreur est négligeable, cependant ce point devra être étudié attentivement en fonction de chaque situation, et notamment dans les cas du couplage fort ou des cavités de très grand facteur de qualité.

Nous indiquons également que la méthode utilisant les intensités de saturation doit être utilisée avec précaution. En effet, nous avons pu mettre en évidence une dépendance importante associée à la valeur du facteur de qualité. Dans notre cas une variation de $Q$ de 10% donne des valeurs pouvant dépasser les prédictions théoriques !

Enfin, nous avons pu constater la dépendance en température du taux de relaxation des charges depuis le continuum vers les états de la boîte (voir section 4.2). Cet effet est pris en compte dans notre description. En revanche, nos modèles n'incluent pas une éventuelle dépendance du taux de relaxation des charges avec la puissance de pompe. L'influence des

recombinaisons de type Auger sur le taux de charge a cependant déjà été mise en évidence dans des situations similaires [103]. Nous soulignons donc que la méthode basée sur le calcul des largeurs à faible intensité (voir partie 4.4) est indépendante de cet effet. L'accord entre les différents résultats nous permet d'affirmer que cet effet est négligeable dans notre cas.

Ce type d'approches présente un réel avantage lorsque la quantité de signal de photoluminescence est faible. En effet, dans une expérience résolue en temps, la puissance collectée est inférieure et l'efficacité des détecteurs est moins bonne, ce qui peut s'avérer pénalisant dans le cas de cavités dont le diagramme de rayonnement n'est pas optimisé dans l'axe de la collecte. D'autre part, il est possible de mesurer des facteurs de Purcell arbitrairement grands [4], contrairement au cas des expériences résolues en temps, qui sont limitées par la résolution temporelle de leur détecteur.

Pour finir, le lecteur attentif aura remarqué que l'ensemble de ces approches reposent en réalité sur des interprétations différentes des *mêmes données expérimentales*. Il est donc légitime de se demander si une méthode plus "globale" ne pourrait pas être mise en place, qui consisterait à ajuster les courbes de saturation en fonction du désaccord (figure 4.6), avec le facteur de Purcell comme paramètre libre. Si en théorie la réponse est oui, en pratique l'idée est moins séduisante qu'il n'y parait. En effet, outre la difficulté associée à l'implémentation d'un code pour réaliser un ajustement global avec autant de paramètres, le véritable problème se situe au niveau de la modélisation physique du système. En effet, l'étude des puissances de saturation montre par exemple la nécessité de prendre en compte l'effet de la température sur l'efficacité de pompage. Ici, une modélisation phénoménologique *a posteriori* nous permet d'obtenir un résultat satisfaisant. Dans le cas d'un ajustement global cet effet devra être pris en compte *a priori* dans le modèle, alors même que l'effet n'est pas facile à détecter sur les simples courbes de saturation. En segmentant l'analyse de donnée, il semble donc plus facile d'obtenir à la fois une analyse physique du système et un résultat satisfaisant.

4. dans la limite du couplage faible !

# Chapitre 5

# Mesure de l'effet Purcell lors d'une expérience résolue en temps

**Contents**


**5.1 Mesure du taux de relaxation . . . . . 71**
5.1.1 Principe de la mesure . . . . . 71
5.1.2 Description du montage expérimental . . . . . 72
5.1.3 Calibration et réponse instrumentale . . . . . 74
**5.2 Cas de l'émetteur désaccordé . . . . . 76**
5.2.1 Mesure du temps de déclin . . . . . 76
5.2.2 Modèle théorique . . . . . 78
5.2.3 Ajustement des données expérimentales . . . . . 80
**5.3 Cas de l'émetteur à résonance . . . . . 81**
5.3.1 Temps de déclin - différences avec le cas non résonant . . . . . 81
5.3.2 Rôle des émetteurs désaccordés . . . . . 82
5.3.3 Adaptation du modèle . . . . . 85
**5.4 Conclusions . . . . . 86**
5.4.1 Evolution du temps de vie avec le désaccord . . . . . 86
5.4.2 Discussion . . . . . 88


Afin de confirmer les résultats obtenus sous excitation continue, on présente dans ce chapitre une étude de l'évolution du temps de vie de la boîte quantique en fonction du désaccord avec la cavité. Cette expérience permet d'observer directement l'influence de la cavité sur le taux d'émission de l'émetteur en fonction de leur couplage spectral. Le facteur de Purcell se définit alors à partir du rapport entre le taux d'émission $\gamma(\Delta = 0)$ de l'émetteur à résonance et de son taux d'émission $\gamma(\Delta = \infty)$ à grand désaccord (toujours dans l'approximation où $\Gamma_0 \simeq \gamma_{leak} \equiv \gamma(\Delta = \infty)$) :

$$F = \frac{\gamma(\Delta = 0)}{\gamma(\Delta = \infty)} - 1, \tag{5.1}$$

Ce chapitre se divise en quatre parties. Dans la première, nous présentons le principe de l'expérience résolue en temps et la méthode expérimentale mise en place. Les deux suivantes

sont consacrées aux mesures effectuées dans les cas non-résonnant et résonnant. Enfin, dans une dernière partie, on effectue la synthèse des résultats et l'on compare la valeur du facteur de Purcell ainsi obtenue à celles mesurées dans la partie précédente.

## 5.1 Mesure du taux de relaxation

### 5.1.1 Principe de la mesure

La comparaison des temps de vie correspond à la méthode historique utilisée pour démontrer expérimentalement l'effet Purcell [3, 28]. Son principe est simple : il s'agit de pomper la boîte quantique de manière impulsionnelle afin de pouvoir observer le régime transitoire associé à la recombinaison radiative d'un exciton. Dans la pratique, on répète cette expérience périodiquement, à des intervalles de temps suffisamment longs pour que la boîte quantique puisse entièrement relaxer entre chaque impulsion, et l'on construit une statistique à partir de l'ensemble des résultats, qui reflète la dynamique d'émission du système. Il faut cependant rester très attentif à ce que l'on mesure dans ce type d'expérience. La grandeur qui nous intéresse est le *temps de vie radiatif* (ou temps de relaxation), qui est associé à la recombinaison radiative d'un exciton : la boîte quantique passe de l'état excité à l'état fondamental en émettant un photon. Il se peut cependant, que d'autres mécanismes participent à vider ou remplir le niveau excité : processus non-radiatifs, peuplement de l'état noir, recombinaison d'états d'énergie supérieure vers le premier état excité (voir schéma 5.1). La statistique d'émission de photons dépend alors de l'ensemble de ces phénomènes. Ce que l'on mesure dans une expérience résolue en temps est donc le *temps de déclin* de la population d'un niveau, ou la vitesse moyenne à laquelle se dépeuple ce niveau, qui diffère du temps de vie radiatif en fonction de l'importance des mécanismes additionnels.

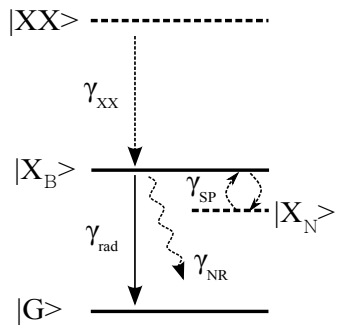


FIGURE 5.1 – Schéma montrant un exemple des processus qui peuvent participer au peuplement (dépeuplement) du niveau excitonique. $|X_B\rangle$ et $|X_N\rangle$ représentent les états brillant et noir de l'exciton, $\gamma_{SP}$ le taux de spin-flip entre ces deux niveaux (cf partie 5.4.2), $\gamma_{NR}$ correspond au taux d'émission dans des modes non-radiatifs et $\gamma_{XX}$ au taux d'émission du biexciton.

De ce point de vue, ce sont les atomes qui se rapprochent le plus du schéma canonique : il n'y a pas de processus multi-excitonique et les recombinaisons sont entièrement radiatives. Dans les boîtes quantiques, si l'approximation du rendement radiatif unitaire est également

justifiée [104], l'influence des états multi-excitoniques doit être prise en compte. En effet, dans notre cas le pompage est non résonnant et s'opère par relaxation depuis un continuum, ce qui implique que le nombre d'excitations dépend linéairement de la puissance. De même, la présence d'états noirs peut avoir une influence considérable sur les temps de déclin observés [105, 106, 107]. Nous reviendrons sur ce point, que nous négligerons dans un premier temps, lors de la discussion de nos résultats (voir partie 5.4.2). Le temps de déclin mesuré sur les boîtes quantiques nécessite donc un traitement attentif et les mécanismes additionnels qui participent à peupler ou dépeupler le niveau doivent être pris en compte dans l'écriture des équations différentielles qui régissent les populations afin d'ajuster les courbes expérimentales.

### 5.1.2 Description du montage expérimental

Le schéma du montage expérimental est présenté à la figure 5.2. L'excitation est réalisée au moyen d'un laser Ti :Sa accordable en fréquence , qui génère des impulsions pico-secondes avec un taux de répétition de 80MHz ($\sim 12\ ns$). Deux photodiodes rapides mesurent le délai entre l'excitation et l'émission d'un photon selon un principe "Start-Stop". Lorsque la première photodiode (PD) détecte l'arrivée d'un pulse, elle transmet un signal à la carte de comptage qui déclenche un chronomètre. La boîte quantique est excitée et relaxe en émettant un photon. Lorsque la seconde photodiode (APD) détecte l'arrivée de ce photon, le chronomètre est arrêté. Le délai est alors reporté dans l'histogramme donnant le nombre de photons détectés en fonction de leur temps d'arrivée. Un exemple d'histogramme, obtenu sur une transition excitonique après 3 $min$ d'intégration, est donné à la figure 5.2. Dans la pratique, le schéma "Start-Stop" est inversé (c'est le photon de la boîte quantique qui déclenche le chronomètre et l'impulsion laser qui le stoppe) afin d'optimiser le comptage. Pour comprendre cette particularité, on rappelle d'une part que le nombre de photons émis (par la boîte quantique) par pulse est inférieur ou égal à un, et d'autre part que l'APD possède un temps mort de 45 $ns$. En inversant le système de comptage, on élimine ainsi les événements où aucun photon n'est émis par la boîte quantique, qui "consomment" inutilement du temps d'intégration.

De même que dans la partie précédente, l'excitation se fait de manière non-résonnante autour de 825 $nm$. Comme nous l'avons déjà vu, on excite ainsi un grand nombre de boîtes quantiques, parmi lesquelles celle qui nous intéresse. On souhaite donc, encore une fois, pouvoir sélectionner les photons d'une transition bien précise. Pour ce faire, on utilise à nouveau le spectromètre à partir duquel on obtient un premier filtrage et qui fixe la résolution spectrale (voir section 3.1). En ajustant l'ouverture des fentes de sortie, on sélectionne ensuite une fenêtre spectrale plus ou moins large, qu'un jeu de lentilles adapté permet de focaliser sur le pixel unique de l'APD. Dans notre cas, nous avons choisi une fenêtre de 0.09 $nm$, qui permet de maximiser le nombre de photons collectés tout en conservant la plus grande finesse possible (cf figure 5.2). Les photons sont ensuite convertis en photo-électrons par l'APD avec, cependant, une très mauvaise efficacité quantique aux longueurs d'onde proches infrarouges. Nous estimons sa valeur à 2% à 935 $nm$, valeur cohérente avec les données constructeur, qui indiquent une efficacité minimale de 3% à 900 $nm$ (cf section 3.1.4). Dans les situations où la quantité de lumière est limitée, un très bon alignement est donc exigé pour pouvoir extraire le

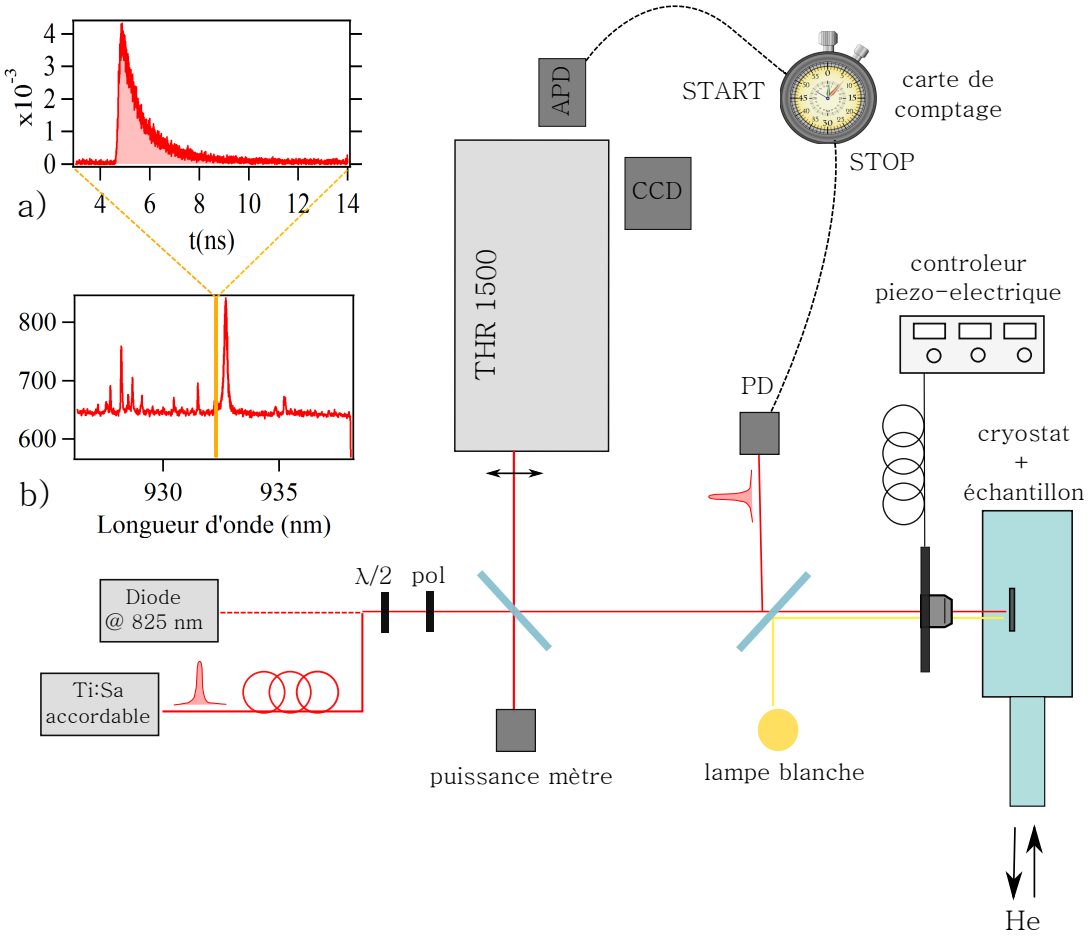


FIGURE 5.2 – Schéma du montage pour une expérience résolue en temps. PD et APD désignent respectivement la photodiode rapide et la photodiode à avalanche utilisée pour la détection à bas seuil. Les encarts illustrent le résultat d'une mesure de temps de déclin sur la zone repérée en orange dans le spectre de PL.

signal utile du bruit de l'APD, essentiellement dû au courant d'obscurité. Dans la pratique, des temps d'intégration compris entre quelques secondes et 15 *min* ont été utilisés pour obtenir des résultats satisfaisants dans les différentes situations.

Les expériences résolues en temps reposent sur un principe simple, mais exigent à la fois un matériel performant et un montage soigné. Le résultat est parfois long et complexe à obtenir, notamment du fait de la très petite taille du capteur ($20\mu$m $\times 20\mu$m) de l'APD et du grand nombre de degrés de liberté dans le réglage. On notera également qu'en dépit de notre effort pour augmenter la transmission du montage expérimental, certaines mesures ont été effectuées au seuil de détection. On insiste donc sur le fait que pour ce type d'expériences le schéma de détection doit être soigneusement pensé au préalable, particulièrement dans le domaine proche infrarouge où les capteurs en silicium usuels montrent leurs limites.

### 5.1.3 Calibration et réponse instrumentale

Afin de pouvoir remonter aux constantes physique de notre problème, on souhaite également connaître le temps de réponse lié au montage expérimental. Dans les expériences présentées plus loin, ce paramètre sera systématiquement pris en compte lorsque l'on souhaite réaliser une analyse quantitative.

Plusieurs éléments contribuent à diminuer la résolution temporelle : la réponse temporelle des détecteurs $\Delta_{det_1}$ et $\Delta_{det_2}$, la résolution de la carte de comptage $\Delta_{carte}$ et le retard temporel lié au réseau $\Delta_{res}$. Ce dernier provient de la différence de marche entre les rayons frappant l'une ou l'autre des extrémités du réseau. La réponse temporelle totale est alors donnée par

$$\Delta = \sqrt{\Delta_{det_1}^2 + \Delta_{det_2}^2 + \Delta_{carte}^2 + \Delta_{res}^2} \tag{5.2}$$

On trouve sur les données constructeur

$$\Delta_{det_1} = \Delta_{det_2} = 40ps \tag{5.3}$$

$$\Delta_{carte} = 10ps \tag{5.4}$$

et $\Delta_{res}$, dépend de la taille $L$ du réseau et de l'angle d'incidence $\alpha$. Dans notre cas, on obtient

$$\Delta_{res} = \frac{2L\sin\alpha}{c} \tag{5.5}$$

avec $c$ la vitesse de la lumière. Finalement, avec $L = 11\ cm$ et $\alpha = 30°$, on trouve $\Delta_{res} \sim 320\ ps$, soit une résolution totale $\Delta = 325\ ps$.

Expérimentalement, la résolution du montage est obtenue en enregistrant la distribution des temps d'arrivée du pulse laser réfléchi sur un miroir. Le résultat est représenté à la figure 5.3 où la longueur d'onde du laser est fixée à 830 $nm$. On mesure, à mi-hauteur, une largeur d'environ $75 \pm 5\ ps$ très différente de l'estimation précédente. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que l'on n'utilise pas toute la surface du réseau. En effet, dans le calcul précédent, l'essentiel du retard est liée à la différence de marche accumulée sur le réseau. On peut montrer que pour un faisceau dont le diamètre sur le réseau est $L/4$, on retrouve ce résultat. Cette valeur fixe également une limite maximum au facteur de Purcell mesurable. En effet, les boîtes InAs présentent des temps de vie radiatif de l'ordre de la nano-seconde. Un facteur de Purcell $F = 10$ (valeur dans l'état de l'art aussi bien pour les cristaux photoniques que pour les micro-piliers) nous amène donc aux limites du montage. Dans ces cas là, on se tournera plutôt vers des détecteurs comme les streak-caméras, qui offrent aujourd'hui des résolutions allant jusqu'à quelques pico-secondes seulement.

On notera d'autre part que la courbe n'est pas parfaitement symétrique : au delà de 0.2 $ns$ le signal décline lentement jusqu'à tendre vers 0. Ce phénomène, connu sous le nom de "queue de diffusion", est typique de ces détecteurs et varie avec la longueur d'onde. La figure 5.4 montre une vue en échelle logarithmique de la courbe précédente, où la "queue de diffusion" apparaît clairement. Le rapport entre l'amplitude de la "queue de diffusion" et le pic de réponse

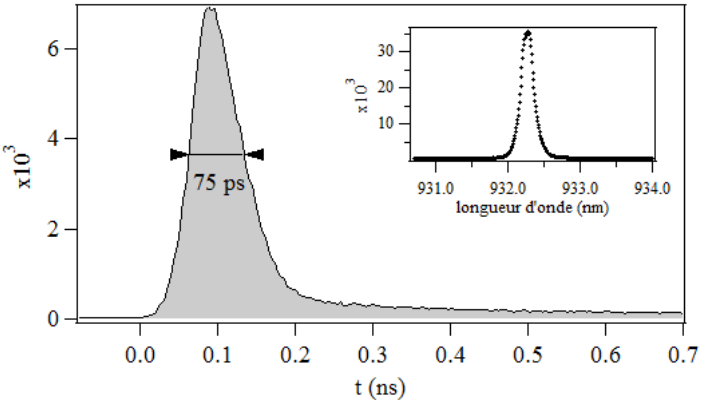


FIGURE 5.3 – Fonction de réponse instrumentale mesurée à 830 $nm$.

instrumentale donne 20%, valeur cohérente avec les données constructeur. Pour finir, nous avons réalisé ces mesures à différentes longueurs d'onde entre 830 $nm$ et 930 $nm$, qui donnent toutes des résultats similaires, aussi bien concernant le temps de réponse instrumental, que pour la "queue de diffusion". On pourra donc utiliser la mesure de la réponse instrumentale effectuée à la longueur d'onde d'excitation (825 $nm$) pour extraire l'information utile des mesures réalisées sur notre boîte quantique à 935 $nm$ sans commettre d'erreur importante. Ce résultat nous permet de minimiser le nombre d'opérations à réaliser lors d'une expérience, et simplifie donc l'acquisition des données.

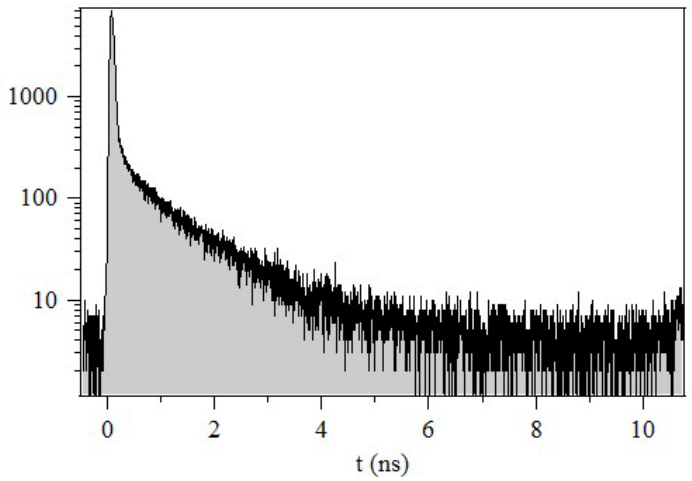


FIGURE 5.4 – Fonction de réponse instrumentale en échelle logarithmique. La "queue de diffusion" apparaît sous la forme d'une pente aux temps longs.

## 5.2 Cas de l'émetteur désaccordé

On souhaite, dans un premier temps, mesurer le temps de vie de la boîte quantique désaccordée. Pour cela, on fixe la température de l'échantillon à 15 $K$, ce qui correspond à une situation où la boîte quantique est décalée d'environ deux largeurs de cavité vers le bleu par rapport à la longueur d'onde de la cavité ($\Delta/\kappa = 2.1$) [1]. Dans ce cas, le couplage à la cavité est négligeable, et le temps que l'on mesure est celui de la boîte quantique dans le matériau massif.

### 5.2.1 Mesure du temps de déclin

La figure 5.5 montre un spectre obtenu sous excitation impulsionnelle après une seconde d'intégration. On a repéré en jaune la fenêtre spectrale correspondant à la zone integrée par l'APD.

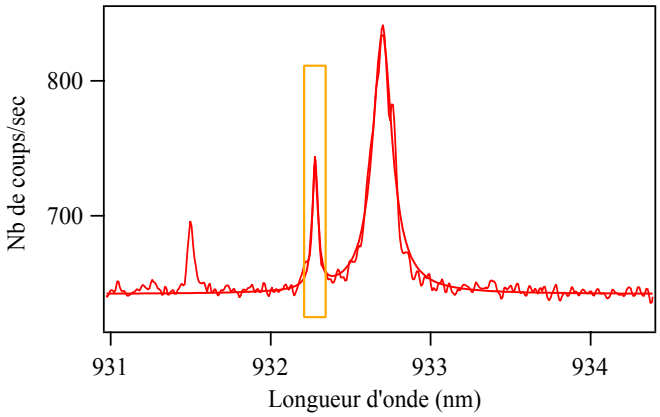


FIGURE 5.5 – Spectre de photoluminescence sous excitation impulsionnelle à $T =$ 10K. On a repéré en jaune la plage spectrale correspondant à la fenêtre d'intégration de l'APD.

Sur cette même figure, on peut constater que le nombre de photons détectés par unité de temps est relativement faible ($\sim$ 150 $cp/s$). Il y a deux raisons à cela. D'une part, la boîte quantique n'est pas résonnante avec la cavité. Comme indiqué précédemment, elle émet donc principalement via les modes de pertes qui sont mal collectés. D'autre part, la quantité de signal détectée par unité de temps dans le cas d'une excitation impulsionnelle est diminuée par rapport à la situation sous excitation continue. Cette différence s'explique par le fait que dans le régime impulsionnel, la puissance maximale rayonnée par une boîte quantique est fixée par le délai entre deux impulsion. Dans notre cas, le temps de vie radiatif attendu est $\sim 1ns$ tandis que le délai entre deux excitations est de 12 $ns$. La quantité de signal obtenue par unité

1. On pourra noter que la relation entre la température et la position relative des raies de la boîte quantique et de la cavité est légèrement différente dans ce chapitre par rapport au précédent. L'explication vient du fait que ces expériences ont été réalisées au cours de deux journées différentes. Or nous avons pu constater une dégradation de la thermalisation de l'échantillon au fur et à mesure que l'on augmente le nombre de cycles de mises à froid.

de temps est donc divisée par 10 environ par rapport au cas d'une excitation continue. Par conséquent, lorsque l'exciton est hors de la cavité, la quantité de signal collectée par l'APD, dont le rendement quantique est encore inférieur à celui de la CCD, est parfois juste suffisante pour dépasser le seuil du bruit. Dans ces cas là, on augmente la durée d'intégration pour reconstruire une statistique relativement lisse. Des temps d'intégration typiques se situent entre 1 et 15 *min* selon la puissance de pompe utilisée.

Comme nous l'avons dit, dans le cas de boîtes quantiques, le temps de déclin d'une transition est souvent différent de son temps de vie radiatif. L'influence des états multi-excitoniques tout particulièrement, peut être clairement mis en évidence, comme nous allons le voir maintenant. La figure 5.6 montre le résultat de deux mesures de temps de déclin effectuées en dessous (courbe rouge) et au dessus (courbe grise) de la saturation du niveau excitonique. Dans le premier cas, on observe un comportement exponentiel tandis que dans le second apparaît un plateau aux temps courts, qui est la signature du peuplement d'états multi-excitoniques.

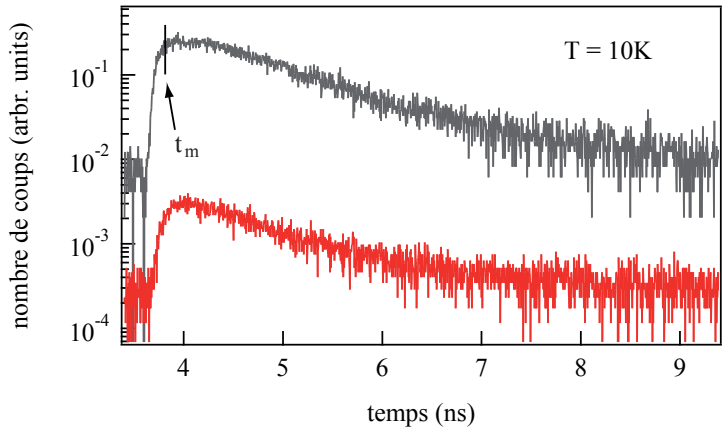


FIGURE 5.6 – Histogramme du nombre de photons détectés en fonction du temps pour deux puissances d'excitation. La courbe rouge (*resp.* grise) correspond à une puissance $P = 0.04\mu$W ($P = 1.8\mu$W) inférieure (supérieure) à la saturation. Les courbes sont décalées pour une meilleure lisibilité. $t_m$ représente le temps de montée.

Qualitativement, ce résultat peut être compris à partir de notre représentation de la boîte quantique sous la forme d'un système à trois niveaux (voir schéma 5.7). $|G\rangle$ correspond à l'état fondamental dans lequel la boîte ne contient aucun exciton, $|X\rangle$ correspond à l'état excitonique dont on étudie le temps de déclin et $|XX\rangle$ correspond à l'état bi-excitonique, où deux excitations sont créées. On peut alors distinguer deux régimes en fonction de la puissance d'excitation. Lorsque l'excitation est faible, c'est à dire lorsque l'on crée moins d'un exciton par pulse, on peuple exclusivement l'état $|X\rangle$, qui relaxe au bout d'un temps caractéristique de la transition radiative. Dans ce cas, le temps de déclin est égal au temps de vie radiatif (dans l'hypothèse où il n'y a pas d'autres canaux de désexcitation). Pour une puissance de pompe plus forte, on commence à peupler le niveau $|XX\rangle$ (voire d'autres états d'ordres supérieurs non représentés ici). Il faut alors attendre la fin de la cascade radiative pour observer l'émission

d'un photon à la transition d'intérêt ($|X\rangle \rightarrow |G\rangle$). Expérimentalement cela se traduit par un retard aux temps courts, d'autant plus important que la puissance d'excitation est grande. Nous allons voir que ce comportement peut être modélisé dans le cadre d'un système à trois niveaux.

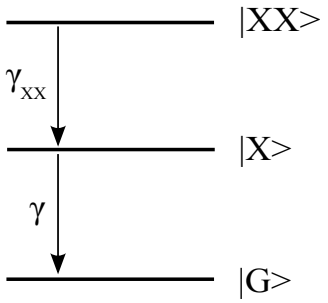


FIGURE 5.7 – Représentation de la boîte quantique sous la forme d'un système à trois niveaux correspondants à la présence de 0, 1, ou 2 exciton(s). $\gamma$ et $\gamma_{XX}$ sont les temps de vie associés aux transitions $|X\rangle \rightarrow |G\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |X\rangle$

### 5.2.2 Modèle théorique

Afin de modéliser la dynamique d'émission, on fait l'hypothèse que le temps de charge du système est court devant les temps radiatifs. Les temps de montée courts, repérés sur la figure 5.6, justifient cette approximation. On fixe donc, dans un premier temps, les conditions initiales du système en fonction de la puissance de pompage, puis on laisse le système relaxer à partir de ces conditions initiales.

#### Détermination des conditions initiales

On présente ici un modèle simple décrivant l'état de charge de notre système en fonction de la puissance d'excitation. Pour cela on fait deux hypothèses supplémentaires. Premièrement, on suppose que la boîte quantique ne capture que des paires électron-trou (donc des excitons) et pas de porteur unique. Cette hypothèse est confirmée par l'absence de raies chargées dans nos spectres de micro-PL. Deuxièmement, on suppose que le processus de capture est aléatoire, et notamment que la capture d'une charge ne dépend pas de la présence d'autres charges. Cela implique que la relation entre la puissance de pompe et le nombre d'excitons créés est linéaire. La probabilité de capturer $n$ paires électron-trou suit alors une statistique poissonnienne

$$p(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} \tag{5.6}$$

où $\langle n \rangle$ est le nombre moyen d'excitons créés par impulsion, qui est proportionnel à la puissance d'excitation $P$.

On calcule la population initiale du niveau excitonique $p_{X_0}$(resp. bi-excitonique, $p_{XX_0}$) en fonction de la puissance de pompe, qui correspond à la probabilité de capturer *au moins* une (resp. deux) paire(s) électron-trou.

$$p_{X_0} \propto (1 - p(0)) = (1 - e^{-P/P_0}) \tag{5.7}$$

$$p_{XX_0} \propto (1 - p(0) - p(1)) = (1 - e^{-P/P_0} - \frac{P}{P_0} e^{-P/P_0}) \tag{5.8}$$

où $P_0$ est la puissance nécessaire pour générer un exciton et caractérise l'absorption du système. L'évolution des populations initiales des états $|X\rangle$ et $|XX\rangle$ en fonction de $P/P_0$ est illustrée à la figure 5.8

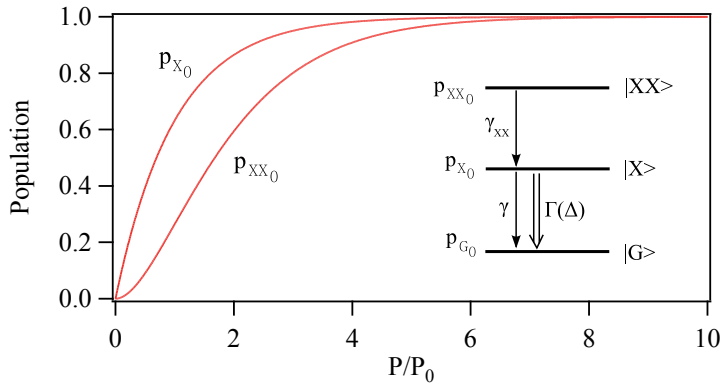


FIGURE 5.8 – Populations initiales en fonction de la puissance d'excitation.

et vérifie $p_{X_0} + p_{XX_0} = \langle n \rangle$

### Relaxation du système

La dynamique du système est obtenue en résolvant le système d'équations différentielles suivant :

$$\frac{d}{dt} p_{XX}(t) = \gamma_{XX} p_{XX}(t) \tag{5.9}$$

$$\frac{d}{dt} p_X(t) = \gamma_{XX} p_{XX}(t) - \gamma_X p_X(t) \tag{5.10}$$

$$\frac{d}{dt} p_G(t) = \gamma_X p_X(t) \tag{5.11}$$

à partir des conditions initiales déterminées précédemment. Ce système se résout très bien analytiquement, et l'on obtient l'évolution de la population du niveau excitonique en fonction des taux d'émission $\gamma_X$ et $\gamma_{XX}$.

$$p_X(t) = p_{X_0} e^{-\gamma_X t} + p_{XX_0} \frac{\gamma_{XX}}{\gamma_X - \gamma_{XX}} \left(e^{-\gamma_{XX} t} - e^{-\gamma_X t}\right) \tag{5.12}$$

A faible excitation, la population du niveau $XX$ est négligeable devant celle du niveau $X$ et le déclin est mono-exponentiel. Lorsque l'on augmente la puissance, $p_{XX_0}$ augmente progressivement, ce qui se traduit par l'apparition d'un temps de montée, qui correspond au temps

de relaxation du biexciton vers l'exciton. La figure 5.9 donne des exemples de simulations de temps de déclin obtenues à partir de ce modèle pour différentes puissances, qui reproduit bien la situation observée expérimentalement.

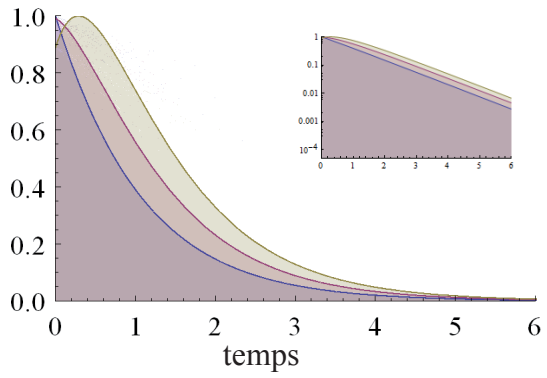


FIGURE 5.9 – Temps de déclin pour différentes populations initiales en fonction de la puissance d'excitation, de la plus faible (courbe bleue) vers la plus forte (courbe grise). L'encadré reprend les mêmes données sur une échelle logarithmique.

### 5.2.3 Ajustement des données expérimentales

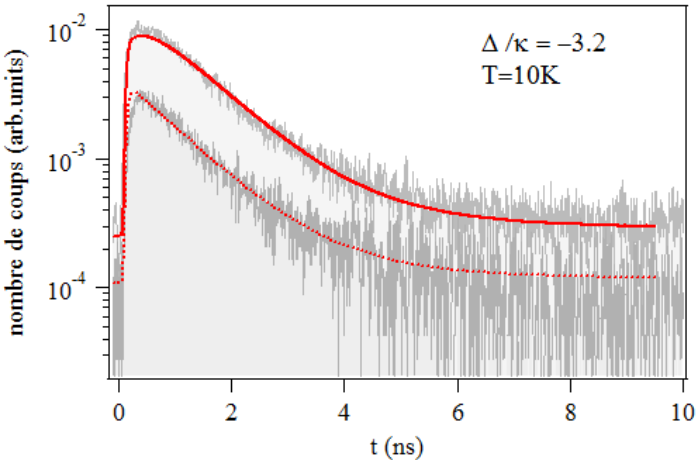


FIGURE 5.10 – Ajustement des courbes de déclin par un modèle de système à trois niveaux

La figure 5.10 présente le résultat de la mesure du temps de déclin pour deux puissances d'excitation $P = P_{sat}$ et $P = 3P_{sat}$ obtenue après plusieurs minutes d'intégration (courbes grises). Les ajustements réalisés simultanément sur les deux courbes sont indiqués en traits rouges et montrent un très bon accord. On en déduit la valeur des deux seuls paramètres

laissés libres

$$\tau_X(\Delta = -3.2\kappa) = 1/\gamma_X = 0.8ns \pm 0.05ns \quad (5.13)$$

$$\tau_{XX}(\Delta = -3.2\kappa) = 1/\gamma_{XX} = 0.4ns \pm 0.02ns \quad (5.14)$$

Ce résultat est cohérent avec les valeurs obtenues dans la littérature pour des boîtes quantiques InAs dans GaAs [28]. La valeur du temps de vie $\tau_{XX}$ du bi-exciton est par ailleurs confirmée à partir d'une expérience indépendante où l'on mesure cette fois directement le temps de déclin de la raie $XX$. Cette valeur sera fixée pour toute la suite, car, comme nous l'avons déjà souligné, le bi-exciton reste désaccordé tout au long de l'expérience (voir figure 3.9). D'autre part, les effets de recombinaisons non radiatives sont négligeables dans notre gamme de température ($5K \rightarrow 35K$).

## 5.3 Cas de l'émetteur à résonance

Afin de confirmer l'influence de la cavité sur le taux d'émission spontanée, et les résultats du chapitre précédent, on souhaite mesurer le temps de vie de la boîte quantique à résonance.

### 5.3.1 Temps de déclin - différences avec le cas non résonant

Conformément aux critères que nous avons établis dans la section précédente, on se place largement sous la saturation afin que nos mesures de temps de déclin ne soient pas affectées par les transitions d'ordres supérieurs. La figure 5.11 donne un exemple typique du résultat obtenu sur notre boîte quantique d'intérêt pour une puissance d'excitation $P = P_{sat}/10$.

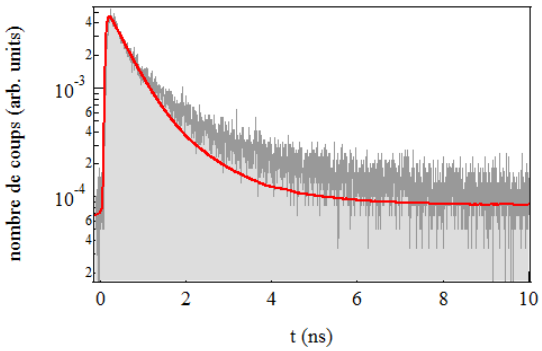


FIGURE 5.11 – Exemple de temps de déclin pour une boîte quantique à résonnance et faiblement excitée ($P = P_{sat}/10$). En rouge, l'ajustement effectué à partir de notre modèle est insuffisant.

On remarque immédiatement que, malgré ces précautions, le résultat diffère de ceux obtenus hors résonance dans des conditions similaires. En effet, deux constantes de temps paraissent se dégager, et l'ajustement effectué sur la base du même modèle que dans la partie précédente ne permet plus de décrire la mesure. Plus remarquable encore, on constate que l'allure du

temps de déclin varie fortement avec la puissance : la figure 5.12 présente un ensemble de trois mesures réalisées sous le seuil de saturation où l'on observe le passage d'une courbe d'allure mono-exponentielle (en vert) vers une courbe d'allure bi-exponentielle (en rouge) au fur et à mesure que l'on diminue la puissance. Nous allons voir comment interpréter cette différence et montrer qu'un modèle simple permet de rendre compte de ces observations.

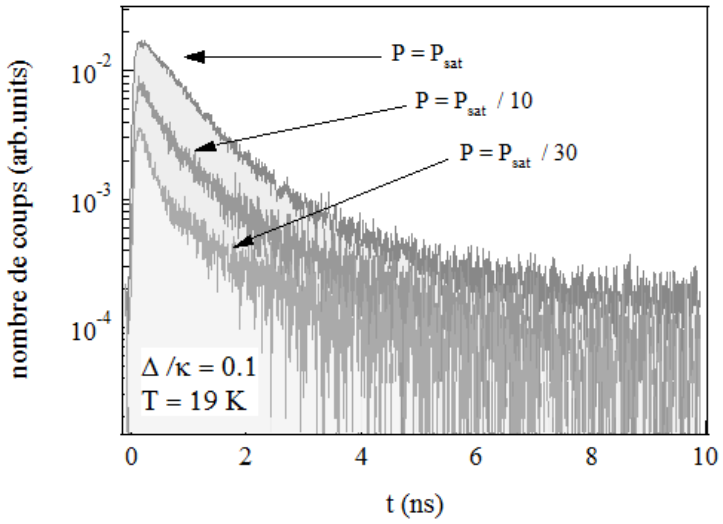


FIGURE 5.12 – Temps de déclin pour trois puissances sous le seuil de saturation. Le passage d'une courbe de type mono-exponentiel vers une courbe d'allure bi-exponentielle ne peut pas être expliqué par un modèle simple à trois niveaux.

### 5.3.2 Rôle des émetteurs désaccordés

Pour comprendre ce phénomène, revenons un instant sur la méthode qui nous permet de mesurer les temps de déclin. Dans la situation hors résonance, l'émetteur étant désaccordé, on sélectionne facilement les photons émis par la boîte quantique uniquement (voir figure 5.5). A résonance, en revanche, la situation est plus complexe car le spectre de la boîte se superpose à celui de la cavité, comme on peut le voir sur la figure 5.13. Les photons détectés par l'APD (correspondant à la plage spectrale marquée en jaune) proviennent donc de la boîte quantique, mais aussi de la cavité. D'autre part, on constate que l'évolution du rapport entre le nombre de photons émis par l'une et l'autre des deux sources n'est pas linéaire avec la puissance. A très basse puissance en effet les photons collectés proviennent essentiellement de la boîte quantique, tandis qu'à plus forte puissance, la situation s'inverse. Les photons collectés proviennent donc à la fois de la boîte quantique et du mode de la cavité. Il est donc indispensable de comprendre l'origine de l'émission dans le mode de cavité, afin de pouvoir prendre en compte ce phénomène additionnel dans nos ajustements.

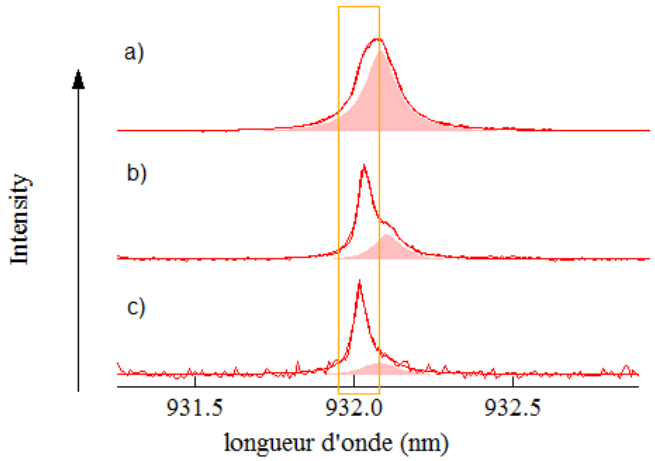


FIGURE 5.13 – Spectres de photoluminescence pour trois puissances sous le seuil de saturation. En rouge plein on a représenté les "photons de la cavité", le rectangle jaune correspond à la fenêtre d'intégration.

### Alimentation du mode de cavité par un émetteur désaccordé

Dans une expérience de micro-PL, il est intéressant de constater qu'il subsiste toujours un fond de luminescence dans le voisinage de la cavité, qui implique que, même lorsqu'aucune boîte quantique n'est spectralement résonnante, on peut observer le mode de cavité (voir par exemple figure 3.9, où l'on constate que le mode est toujours visible même lorsqu'aucune boîte quantique n'est accordée). Récemment, il a été observé que cette émission était corrélée à l'émission de boîtes quantiques désaccordées [44, 108, 45]. L'origine de cette émission est encore débattue, mais plusieurs mécanismes ont été proposés permettant d'appréhender ce résultat. Parmi ces mécanismes, on peut citer le couplage aux phonons acoustiques [109, 110] ou le déphasage pur [47] qui induisent un élargissement de la raie excitonique. Ces mécanismes permettent d'expliquer la persistence du mode de cavité pour des désaccords boîte-cavité allant jusqu'à quelques $meV$. Au delà, il faut prendre en compte le couplage des états d'énergie de la boîte quantique avec les continua de la couche de mouillage, qui engendre un continuum pour chaque état excité [63] (voir figure 5.14). En utilisant ce résultat, de récents travaux ont mis en évidence le rôle des recombinaisons entre états excités, qui génèrent un fond de luminescence dont la largeur peut être aussi grande que 30 $meV$ autour de la raie excitonique [98].

Ce résultat souligne encore une fois l'importance de considérer la spécificité des boîtes quantiques par rapport aux atomes. Nous allons maintenant voir que ces mécanismes d'alimentation de la cavité par des émetteurs désaccordés permettent de comprendre les résultats obtenus sur nos temps de déclins à résonnance.

### Influence sur la mesure du temps de déclin

Pour ce faire, on introduit l'hypothèse selon laquelle les photons de la cavité proviennent d'un ensemble d'émetteurs désaccordés, qui l'alimente selon l'un des processus décrits précé-

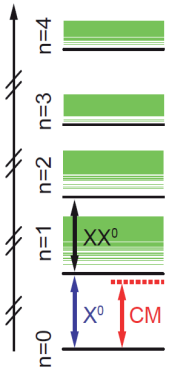


FIGURE 5.14 – Schéma des états d'énergie d'une boîte quantique dans [98]. La présence de continua résulte de l'hybridation des états de la boîte quantique avec le continuum de la couche de mouillage.

dements. Ces émetteurs sont les autres boîtes quantiques présentes dans le micropilier, dont la longueur d'onde d'émission s'étale entre 880 et 940 $nm$. L'allure bi-exponentielle des courbes de temps de déclin à résonance s'explique donc de la manière suivante : le temps long correspond à une moyenne du temps de vie radiatif des émetteurs désaccordés dont une partie de l'émission se fait via le mode de cavité, tandis que le temps court correspond au temps de vie de la boîte quantique résonnante soumise à l'effet Purcell. Pour étayer cette hypothèse, nous avons réalisé des mesures de temps de déclin sur le mode de cavité pour plusieurs situations où aucune boîte quantique n'est spectralement accordée, qui présentent toutes des résultats similaires. Un exemple de ces mesures, obtenue pour un désaccord $\Delta/\kappa = +2$ (correspondant à une température de $32K$) est donné figure 5.15. On constate une légère diminution du temps de vie, qui passe de 1.2 $ns$ à 0.8 $ns$ dans la première décade de puissance, avant de se stabiliser. Il est très difficile de proposer une explication quantitative de ce résultat, pour la simple et bonne raison que la nature même des transitions mises en jeu n'est pas clairement établie. On peut simplement indiquer que la diminution initiale nous semble cohérente avec l'idée qu'en augmentant la puissance on augmente la probabilité de peupler des états excités, qui possèdent généralement des temps de vie plus courts.

Nous interprétons donc les résultats de la figure 5.11 de la façon suivante. Lors d'une mesure de temps de déclin à résonance, on peut distinguer deux origines pour les photons détectés. D'une part, la boîte quantique à résonance, dont le taux d'émission est modifié par effet Purcell, et d'autre part, un ensemble de boîtes désaccordées qui alimentent le mode de cavité, avec un taux correspondant approximativement à celui des boîtes dans le bulk. C'est ce qui explique l'origine des deux temps que l'on peut mettre en évidence. Pour des puissances proches de la saturation de la boîte quantique, le nombre de photons provenant de la seconde origine est largement supérieur (cf figure 5.13), ce qui a pour effet de dissimuler le temps le plus court. Au fur et à mesure que l'on diminue la puissance, ce rapport change jusqu'à s'équilibrer. Ainsi

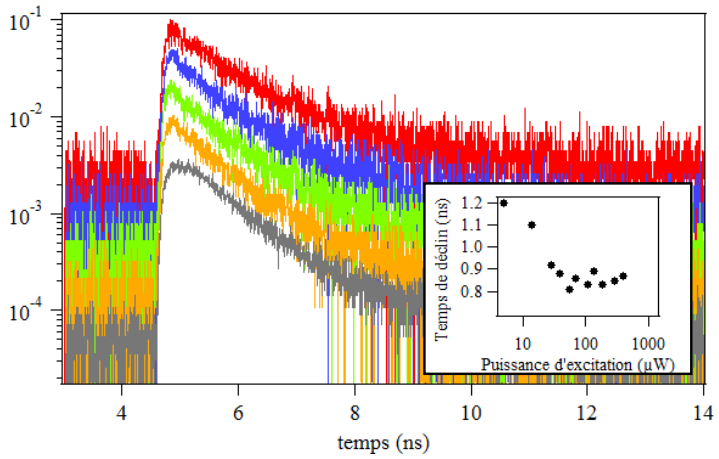


FIGURE 5.15 – Allure des temps de déclin mesurés sur le mode de cavité vide à $T = 30K$ en fonction de la puissance. La saturation de l'exciton correspond à une puissance d'environ 10 $\mu W$

pour $P = P_{sat}/30$, on finit par distinguer nettement les deux constantes de temps.

La figure 5.16 montre la dépendance en puissance d'un spectre de PL, où l'on a repéré l'émission des raies excitonique (X) et biexcitonique, ainsi que celle du mode de cavité. Cet exemple est obtenu pour un désaccord $\Delta/\kappa = +2$, correspondant à une température de 32 $K$, mais est cependant représentatif de ce que l'on observe quel que soit le désaccord. On constate que, bien que les transitions X et XX saturent, l'intensité dans le mode progresse de manière quasi-linéaire. Ce résultat est cohérent avec d'autres observations [98] et doit être compris de la manière suivante. D'une part on considère que l'émission dans le mode de cavité provient d'un grand nombre de boîtes quantiques. Lorsque l'on augmente la puissance de pompe, on excite donc un plus grand nombre de boîtes quantiques, tout particulièrement sur les bords du pilier où la distribution du champ est plus faible. On notera cependant que ces mêmes boîtes sont moins bien couplées au mode de cavité, ce qui diminue leur contribution. D'autre part, au fur et à mesure que la puissance augmente, on peuple des états de plus haute énergie, ce qui augmente les possibilités de recombinaisons à partir de niveaux excités à la longueur d'onde de la cavité. On peut estimer que ce mécanisme est prépondérant étant donné que les résultats obtenus dans [98] montrent un comportement similaire malgré une densité de boîtes beaucoup plus faible.

### 5.3.3 Adaptation du modèle

Pour modéliser cette source additionnelle, on considère l'émission des boîtes quantiques désaccordées sous la forme d'un ensemble de systèmes à deux niveaux, dont le taux d'émission est fixé à partir de mesures indépendantes à $\tau_{add} = 1/\gamma_{add} = 0.8ns$. On ajoute cette contribution au modèle établi dans la partie 5.2.2, ce qui donne l'expression suivante utilisée pour

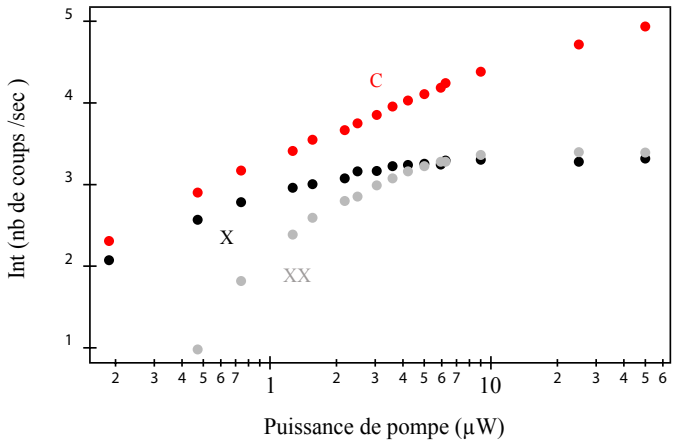


FIGURE 5.16 – Dépendance en puissance d'un spectre de PL, pour un désaccord $\Delta/\kappa = +2$. X, XX et C représentent respectivement les raies associées à l'exciton, au biexciton et au mode de cavité.

ajuster nos courbes expérimentales :

$$p_X(t) = \left(p_{X_0} e^{-\gamma_X t} + p_{XX_0} \frac{\gamma_{XX}}{\gamma_X - \gamma_{XX}} (e^{-\gamma_{XX} t} - e^{-\gamma_X t})\right) + p_{add} e^{-\gamma_{add} t} \tag{5.15}$$

où $p_{add}$ est la population du niveau effectif associé à l'ensemble des émetteurs désaccordés, qui dépend linéairement de la puissance. On réalise alors un ajustement global à partir des courbes obtenues pour différentes puissances d'excitation, dont les valeurs sont également introduites dans le modèle. Lors de l'ajustement, les paramètres libres sont le temps de vie de la boîte quantique et le rapport entre les populations initiales de la boîte d'intérêt et de l'ensemble des émetteurs désaccordés. La résolution s'effectue numériquement, et l'on obtient le temps de vie à résonance :

$$\tau(\Delta = 0.1\kappa) = 0.2 \pm 0.01 \tag{5.16}$$

Le résultat de cet ajustement est présenté figure 5.17, et le très bon accord avec les données expérimentales semble valider notre description.

## 5.4 Conclusions

### 5.4.1 Evolution du temps de vie avec le désaccord

Nous avons répété cette expérience pour différentes valeurs du désaccord entre la boîte quantique et la cavité. Les résultats obtenus à partir de notre modèle sont reportés dans la figure 5.18 où les cercles pleins correspondent aux mesures expérimentales, et la courbe en trait plein est un ajustement lorentzien correspondant au profil spectral de la cavité. On observe bien la diminution progressive du temps de vie de la boîte quantique au fur et à mesure que le couplage spectral augmente, correspondant à la manifestation de l'effet Purcell. Lorsque la

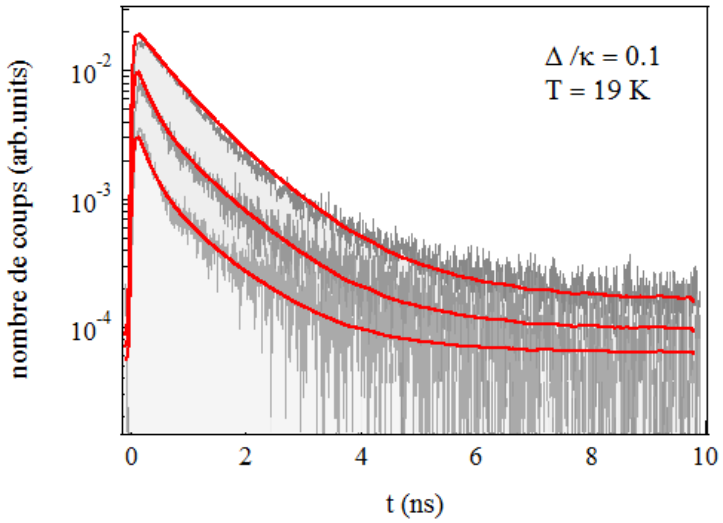


FIGURE 5.17 – Ajustement des courbes expérimentales par notre modèle prenant en compte l'émission d'émetteurs désaccordés via la cavité.

boîte quantique est résonnante, son temps de vie est divisé par quatre par rapport à la situation hors résonance, ce qui nous donne la valeur du facteur de Purcell suivante

$$F = 3.0 \pm 0.5 \tag{5.17}$$

en bon accord avec les résultats de la partie précédente. L'erreur indiquée ici provient de l'incertitude sur l'ajustement.

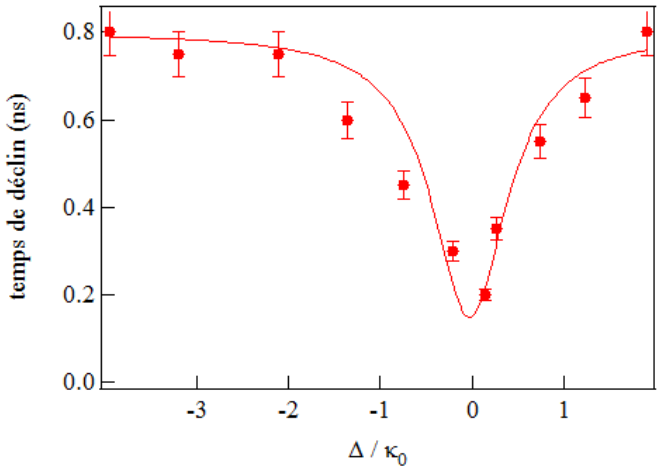


FIGURE 5.18 – Evolution du temps de vie radiatif de la boîte quantique en fonction du désaccord entre la boîte quantique et la cavité.

### 5.4.2 Discussion

#### Hypothèse de l'exciton noir

Comme nous l'avions suggéré en introduction de ce chapitre, la présence d'un exciton noir peut également contribuer à modifier les temps de déclin mesurés et l'observation de deux constantes de temps est caractéristique de ce phénomène [107, 111, 106]. Nous présentons ici les éléments qui permettent de discriminer les deux mécanismes et d'écarter l'hypothèse d'un couplage avec les états noirs du systèmes.

Nous avons vu dans la section 2.2 qu'un exciton est une pseudo-particule résultant du couplage entre un électron de la bande de conduction et un trou de la bande de valence. On peut montrer, à partir du calcul de la structure de bande dans les semi-conducteurs [112], qu'en $\mathbf{k} = 0$ la bande de conduction est deux fois dégénérée (spin $\sigma_z = \pm\frac{1}{2}$), tandis que la bande de valence, quatre fois dégénérée, se compose de deux sous-bandes : une de trous lourds décrite par un moment cinétique $J = 3/2$ et sa projection $j_z = \pm 3/2$, et une de trous légers décrite par la projection $j_z = \pm 1/2$. Dans une boîte quantique, le confinement des charges et les contraintes ont pour effet de lever la dégénérescence entre trous légers et trous lourds. Ces derniers étant confinés à plus basse énergie, ce sont eux qui forment l'état fondamental de trou. Il en résulte que l'état fondamental pour un exciton dans une boîte quantique est quatre fois dégénéré avec des états dont les projections de moment angulaire sont $\Delta m_j = \pm 1$ et $\Delta m_j = \pm 2$. On distingue alors les *excitons brillants*, associés aux transitions de moments angulaires $\Delta m_j = \pm 1$, qui peuvent se coupler à un photon, et les *excitons noirs* que leur moments angulaires ($\Delta m_j = \pm 2$) rend optiquement inactifs.

La figure 5.19 résume ce schéma de la structure fine d'une boîte quantique, où l'on a tenu compte de la levée de dégénérescence entre les niveaux de moments $\Delta m_j = \pm 1$ et $\Delta m_j = \pm 2$ due à l'interaction d'échange entre électrons et trous. Les transitions optiquement actives sont repérées en rouge, tandis que les transitions optiquement inactives sont indiquées en noir. On retrouve le taux de pompage $r$ (en bleu), et l'on introduit également les probabilités de spin-flip $\gamma_{SP_1}$ et $\gamma_{SP_2}$ (en vert), qui permettent de passer de l'exciton brillant vers l'exciton noir et vice versa.

Concrètement, les valeurs du splitting entre les niveaux noirs et brillants, ainsi que les taux de spin-flips dépendent en grande partie de la taille et de la forme de la boîte. Dans le cas d'InAs le splitting est compris entre quelques dizaines et quelques centaines de $\mu eV$, tandis que le temps de relaxation du spin varie de quelques $ns$ à quelques microsecondes $\mu s$ [55, 105, 111]. L'état noir joue donc un rôle de stockage et immobilise l'exciton qui s'y piège pendant une durée longue devant les autres constantes de temps du système. D'un point de vue dynamique, cela se traduit par l'apparition d'une seconde constante temporelle sur les temps de déclin, correspondant au taux de spin flip. Dans un régime ou les constantes de temps associées à ces deux phénomènes sont très différentes, on peut clairement observer (voir figure5.20) un comportement bi-exponentiel du temps de déclin [107, 111]. Aux temps courts, on mesure le taux d'émission radiative, tandis que les temps longs dépendent de la durée du stockage de

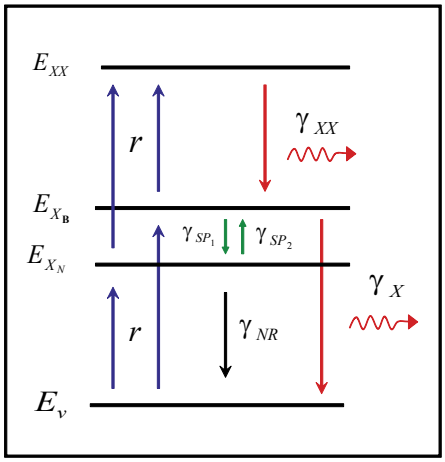


FIGURE 5.19 – Schéma de la structure fine d'une boîte quantique en champ nul. Les transitions optiquement actives (resp. inactives) sont repérées en rouge (resp. noir). Les taux de spin-flip sont représentés en vert.

l'exciton sur l'état noir. Lorsque les constantes de temps sont plus proches, les contributions se mélangent rendant un ajustement plus fin nécessaire. On observe également une forte influence de la température sur l'allure des courbes de déclins correspondant à une thermalisation progressive des états excitoniques. En d'autre termes, l'augmentation de la température améliore l'efficacité des processus de spin-flip.

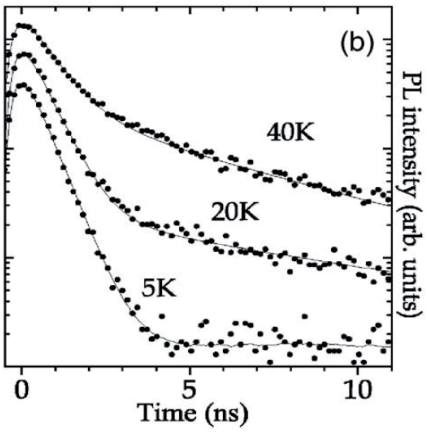


FIGURE 5.20 – Temps de déclin mesurés dans [111] pour une boîte quantique InAs/GaAs en fonction de la température. L'apparition d'un déclin bi-exponentiel avec l'augmentation de la température est attribué au couplage avec les états noirs du système.

Dans notre cas, le temps "long" que l'on mesure est de l'ordre de la nanoseconde (0.8 $ns$), soit un ordre de grandeur de moins que les temps rapportés dans la littérature sur des systèmes

équivalents. On souligne ici que les boîtes quantiques que nous utilisons sont relativement standardes et ne présentent a priori pas de caractéristiques particulières par rapport aux boîtes crues dans les mêmes circonstances.

D'autre part, il faut bien souligner que, dans les expériences présentées ici, l'apparition d'un déclin bi-exponentiel est associée au passage de la boîte quantique dans le mode de cavité, ce que montre la symétrie des résultats autour de la fréquence de résonance de la cavité. Plus précisement, on observe entre 10 $K$ et 19 $K$ (résonance) l'apparition d'un déclin biexponentiel dont le temps *court* diminue au fur et à mesure que l'on se rapproche de la résonance (voir figure 5.21. Après 19 $K$ la situation s'inverse et l'on retrouve, au delà de 25 $K$, un déclin mono-exponentiel dont l'allure est identique au déclin mesuré à 4 $K$. L'évolution en température ne correspond donc pas à celle attendue dans le cas d'un modèle incluant le couplage aux états noirs, mais illustre bien, au contraire, l'influence de la cavité.

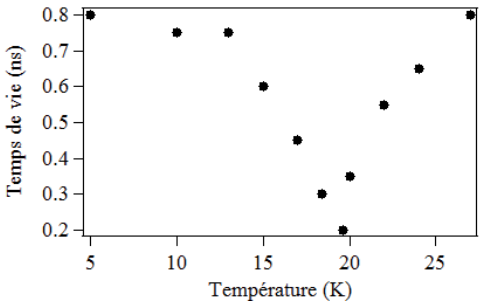


FIGURE 5.21 – Temps de déclin mesurés au temps courts en fonction de la température. La boîte quantique est résonante avec le mode de cavité pour $T = 19.5\ K$

Enfin, on constate clairement une dépendance en puissance qui n'est pas expliquée par ce mécanisme. Pour toutes ces raisons, nous privilégions plutôt l'explication présentée dans ce chapitre.

### Conclusions

Nos expériences mettent donc en évidence la nécessité de prendre en compte la nature des boîtes quantiques de manière plus complète lors de l'analyse des résultats obtenus sur la mesure des temps de déclin. En particulier, les observations rapportées ici dans le cas d'une boîte quantique à résonance montre une influence forte du fond de luminescence des boîte quantiques désaccordées, qui perturbe complètement la mesure pour des puissances supérieures $P_{sat}/10$. On pourra constater que ce phénomène est très peu mentionné dans la littérature (voir [45] pour un autre exemple). Nous estimons que l'observation de ce phénomène résulte d'une configuration particulière, qui n'est en général pas souhaitée et donc très peu étudiée. En effet, la comparaison entre le facteur de Purcell théorique ($F_p = 18.6$) et la valeur expérimentale ($F_p = 3$) semble indiquer que la boîte quantique est mal couplée au mode de la cavité, et se situe plutôt en périphérie du micropilier. Dans la situation résonnante, il y a donc une compétition entre les photons provenant des deux origines différentes : la boîte quantique, spectralement idéalement positionnée mais dont le couplage spatial est mauvais, et l'ensemble des

émetteurs plus ou moins désaccordés, dont une certaine fraction est située au ventre du mode de la cavité et pour laquelle le couplage spatial est optimisé. En conséquence, la proportion des photons détectés dont l'origine est l'ensemble des émetteurs désaccordés est supérieure à ce qui est traditionnellement observé dans le cas où la boite quantique est située au maximum du champ. Ce résultat est par ailleurs amplifié par le fait que la densité de boîtes dans notre échantillon est relativement grande (environ 100 boîtes pour un pilier de diamètre 2.3 $\mu m$).

# Chapitre 6

# Vers l'absorption d'une boîte quantique unique

## Contents


**6.1 Atome uni-dimensionnel . . . . . 94**

6.1.1 Principe général . . . . . 94

6.1.2 Spectroscopie de l'atome 1D . . . . . 95

6.1.3 Non-linéarité géante . . . . . 96

6.1.4 Influence des pertes . . . . . 97

**6.2 Solution expérimentale . . . . . 99**

**6.3 Stratégies expérimentales pour la mesure de non-linéarités . . . . 100**

6.3.1 Schéma expérimental . . . . . 100

6.3.2 Balayage de la résonance par la diode laser . . . . . 101

6.3.3 Balayage en température . . . . . 102

**6.4 Simulations . . . . . 102**

**6.5 Conclusions et perspectives . . . . . 107**


Ce dernier chapitre est consacré à une utilisation intéressante de ces systèmes, qui consiste à exploiter la saturation de l'état excitonique au seuil du photon unique pour réaliser une non-linéarité optique géante. Une telle propriété permet d'envisager de nombreuses applications comme par exemple des portes logiques photoniques ou des détecteurs de photons non destructifs. On se propose de rappeler brièvement les résultats attendus dans le cas théorique de l'atome unidimensionnel avant de montrer qu'une boîte quantique insérée dans un micropilier constitue une solution solide envisageable. Enfin nous présenterons le montage expérimental mis en place pour observer l'absorption d'une boîte quantique unique, ce qui constitue la première étape vers la mise en évidence d'une non-linéarité géante.

## 6.1 Atome uni-dimensionnel

### 6.1.1 Principe général

Lorsque l'on soumet un système à deux niveaux à une excitation cohérente à sa fréquence de transition, l'émission spontanée produit un champ en opposition de phase. Dans une structure de dimensionnalité réduite, cette propriété est particulièrement intéressante. En effet, imaginons le cas d'un atome unidimensionnel, à savoir un système à deux niveaux couplé à un guide d'onde unidirectionnel parfait. Le photon émis spontanément interfère avec l'onde incidente. Si la totalité du champ est absorbée, tout se passe alors, pour l'observateur extérieur, comme si le champ incident était réfléchi. Le principe de la non-linéarité optique présentée ici consiste donc à exploiter la saturation du système à deux niveaux pour observer un changement de l'intensité transmise à travers le guide d'onde en fonction de la puissance incidente (voir figure 6.1).

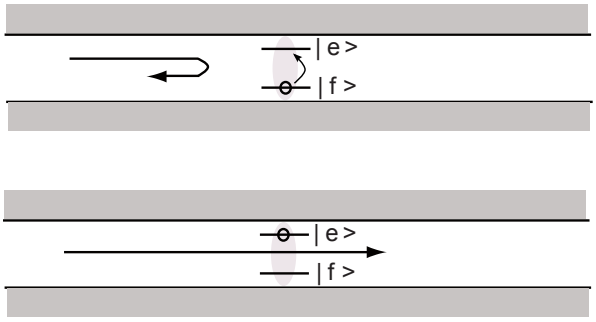


FIGURE 6.1 – Schéma d'un atome unidimensionnel. Dans le premier cas, le champ incident est absorbé et réfléchi par le système à deux niveaux. Dans le second, le système est déjà saturé et le champ est transmis.

Pour se rapprocher de cette situation idéale il est indispensable d'optimiser le recouvrement entre le diagramme de rayonnement en champ lointain de l'atome et celui du mode du champ incident.

Dans le cas d'un atome dans l'espace libre, la section efficace d'absorption d'un champ résonnant est donnée par $\sigma = \frac{3\lambda^2}{2\pi}$. Il est donc apparemment raisonnable d'attendre une extinction importante pour un faisceau optique focalisé sur une surface de quelques $\mu m^2$. Une analyse plus attentive montre cependant qu'une bonne adaptation du faisceau focalisé au profil d'émission du dipole est nécessaire [113, 114]. Les efforts réalisés dans cette direction ont récemment permis d'obtenir des extinctions du champ lointain d'environ 12%, grâce à l'utilisation de microlentilles permettant d'augmenter l'angle de collection [115, 116].

En augmentant l'interaction entre le champ et l'atome, la cavité offre une solution intéressante. En effet, pour une cavité de grand $\beta$, le problème est réduit au couplage entre le champ incident et le mode de cavité. Cette idée à été proposée par Turchette et. al. au milieu des années 90 à partir d'un atome de Cesium en cavité [117, 22] et a depuis été reproduite avec succès dans des systèmes différents [23, 34].

Jusqu'à très récemment, toutes les expériences étaient réalisées en régime de couplage

fort, cependant de récents travaux ont montré qu'un effet non-linéaire important pouvait être atteint même dans le régime de couplage faible [118, 119]. C'est à partir de ces résultats, et plus particulièrement des travaux réalisés dans notre équipe [119], que l'on se propose d'étudier le potentiel de notre système pour réaliser une telle non-linéarité.

### 6.1.2 Spectroscopie de l'atome 1D

La figure 6.2 illustre la situation envisagée ici : un mode de cavité unique (fréquence $\omega_0$) est couplé au réservoir extérieur via deux ports notés 1 et 2. A l'intérieur de la cavité, un atome dont la fréquence de transition $\omega_0 + \Delta$ peut être ajustée à celle de la cavité. $b_{in}(t)$ et $b'_{in}(t)$ représentent le champ incident dans chacun des ports, $b_r(t)$ le champ réfléchi et $b_t(t)$ le champ transmis. On suppose enfin que le système est en régime de couplage faible ($\kappa \gg g$), ce qui signifie que la cavité échange plus rapidement son énergie avec les ports d'entrée et de sortie qu'avec l'atome.

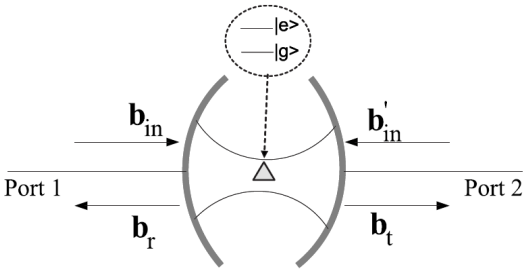


FIGURE 6.2 – Représentation de l'atome 1D sous la forme d'un système couplé atome-cavité.

On écrit alors les équations des modes couplés dans le régime des faibles excitations, d'où l'on déduit la transmission en amplitude du système couplé [119]

$$t(\delta) = \frac{b_t}{b_{in}} = \frac{-1}{1 + i\left(\frac{2\delta+\Delta}{\kappa}\right) - \frac{\Gamma}{4\delta}} \tag{6.1}$$

avec $\delta$ le désaccord entre le champ incident et la fréquence de la cavité, $\kappa$ la largeur de cavité et $\Gamma$ la largeur de la transition atomique prenant en compte l'élargissement dû au couplage à la cavité. Le coefficient en énergie s'obtient facilement à partir de $T(\delta) = |t(\delta)|^2$, et le résultat est tracé à la figure 6.3 en fonction du désaccord normalisé à la largeur de cavité $(\delta + \Delta)/\kappa$.

Dans le cas où $\Gamma = 0$, la situation correspond à celle de la cavité vide, représentée par la courbe tiretée. Comme attendu dans le cas d'une cavité symétrique, le champ est entièrement transmis à résonance et la valeur de la transmission est maximale. Lorsqu'un atome est placé dans la cavité ($\Gamma \neq 0$), on observe l'apparition d'un creux dans la réflectivité, à la longueur d'onde de l'atome (courbe en trait plein). Ce phénomène de réflexion induite par dipole est dû à l'effet d'interférences destructives entre le champ incident et le champ rayonné par l'atome déphasé de $\pi$. En d'autre terme, le système à deux niveaux se comporte comme un miroir sélectif sur une largeur spectrale correspondant au spectre d'absorption de l'atome [120]. Dans le cas où l'atome est désaccordé de $\Delta$ avec le mode de cavité, on observe une résonance de

Fano dans le spectre de transmission (courbe en pointillés).

On montre, à partir de l'expression de $T(\delta)$ à résonance,

$$T(\delta) = \frac{1}{1 + \left(\frac{\Gamma}{4\delta} - \frac{2\delta}{\kappa}\right)} \tag{6.2}$$

que la largeur du pic de transmission est égale à la largeur $\kappa$ de la cavité, et que la largeur du pic de réflectivité correspond à $\Gamma$, soit celle l'atome.

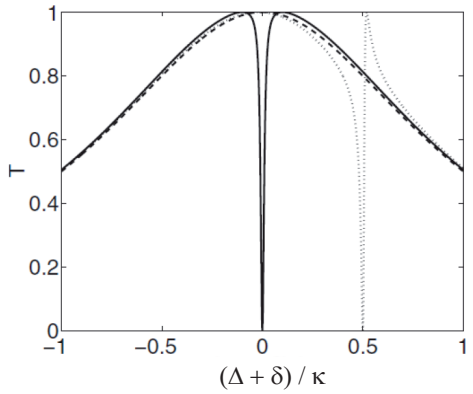


FIGURE 6.3 – Spectre de transmission du système atome-cavité. La courbe tiretée correspond à la cavité vide, celle en trait plein au cas d'un atome résonnant. En pointillé, la situation où l'atome présent dans la cavité présente un désaccord $\Delta$ non nul.

### 6.1.3 Non-linéarité géante

On s'intéresse alors à l'évolution en puissance d'un tel système. Pour ce faire nous nous limiterons au cas de l'atome résonnant, pour lequel l'influence de l'atome est maximale. Considérer un déphasage non nul ne change pas la physique décrite ici.

Nous avons vu que dans le régime linéaire, le champ est entièrement absorbé par l'atome. Le résultat de l'interférence destructive dans le port de sortie est une transmission nulle à la fréquence de l'atome. Au contraire, lorsque l'atome est saturé, il ne peut plus absorber les photons excédentaires qui traversent la cavité sans le voir. En sortie, on perd progressivement le contraste lorsque la puissance est augmentée. Le système à deux niveaux se comporte comme un milieu optique non-linéaire.

On montre alors que la puissance critique, nécessaire pour saturer le système, est de l'ordre d'un photon par temps de vie de l'atome :

$$P_c = \Gamma/4 \tag{6.3}$$

La figure 6.4 donne l'évolution de la transmission du système en fonction du paramètre de saturation $x = |b_{in}|/P_c$, où l'on observe que le comportement du système est profondément modifié entre $|b_{in}| \sim 0$ et $|b_{in}| =\sim 10P_c$. En conclusion, le saut en transmission se produit pour une puissance de pompe faible (de l'ordre de $\Gamma/4$), ce qui justifie l'appellation de non-linéarité optique *géante*.

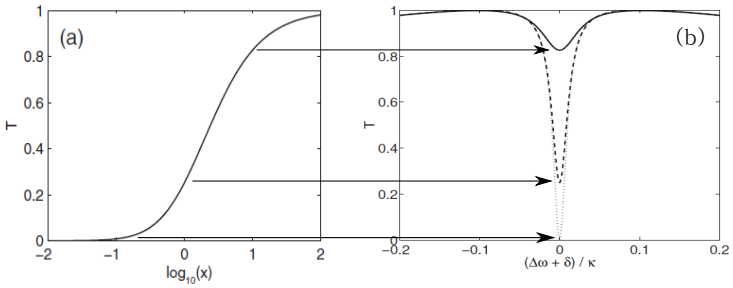


FIGURE 6.4 – Evolution de la transmission à résonance en fonction du paramètre de saturation.

### 6.1.4 Influence des pertes

Pour finir, il est indispensable de considérer les pertes associées à l'utilisation d'une cavité réelle, qui modifient la fonction de transmission du système. Ces pertes ont deux origines. D'une part la boîte quantique peut émettre des photons dans d'autres modes que le mode d'intérêt, et d'autre part les photons guidés par le mode de cavité peuvent diffuser vers l'extérieur à cause des imperfections dues à la gravure.

L'efficacité du couplage au mode est quantifiée par la fraction $\beta$ des photons émis dans le mode de cavité, dont on rappelle l'expression

$$\beta = \frac{\Gamma}{\gamma + \Gamma} \tag{6.4}$$

Nous avons déjà dit que $\beta$ était d'autant plus grand que le facteur de Purcell est grand, nous soulignons ici, qu'il peut être également optimisé en diminuant directement les pertes $\gamma$. Les travaux de Bayer. et. al. montrent en effet qu'il est possible de diminuer $\gamma$ d'un facteur 10 en métallisant les flancs des piliers [87].

Les pertes associées à la diffusion de photons hors du mode de la cavité sont quantifiées par le rapport $Q/Q_0$ entre le facteur de qualité $Q$ du micropilier et le facteur de qualité intrinsèque $Q_0$ (voir section 2.3.4).

On introduit alors les coefficients de transmission et de reflexion en énergie, à résonance, pour la cavité vide

$$\begin{aligned} T_{max} &= \left(\frac{Q}{Q_0}\right)^2 \\ R_{min} &= \left(1 - \frac{Q}{Q_0}\right)^2 \end{aligned} \tag{6.5}$$

et dans le cas d'une cavité contenant une boîte quantique résonnante

$$\begin{aligned} T_{min} &= \left(\frac{1}{1+f}\frac{Q}{Q_0}\right)^2 \\ R_{max} &= \left(1 - \frac{1}{1+f}\frac{Q}{Q_0}\right)^2 \end{aligned} \tag{6.6}$$

où

$$f = \frac{\Gamma_0}{\gamma + 2\gamma^*} F_p \tag{6.7}$$

dépend du facteur de Purcell $F_p$, des taux d'émission $\Gamma_0$ et $\gamma$ de l'atome dans l'espace libre et dans les modes de pertes de la cavité, et tient compte du déphasage pur $\gamma^*$ de l'exciton. La figure 6.5 présente les spectres de transmission et de réflectivité obtenus pour différentes valeurs de $f$ et $Q/Q_0$. Dans les cas a) et b) une cavité parfaitement connectée aux ports d'entrée et de sortie interagit avec un atome dont une partie du rayonnement est émis dans les modes de pertes. Dans les cas c) et d) l'atome est cette fois parfait, et la cavité présente des fuites.

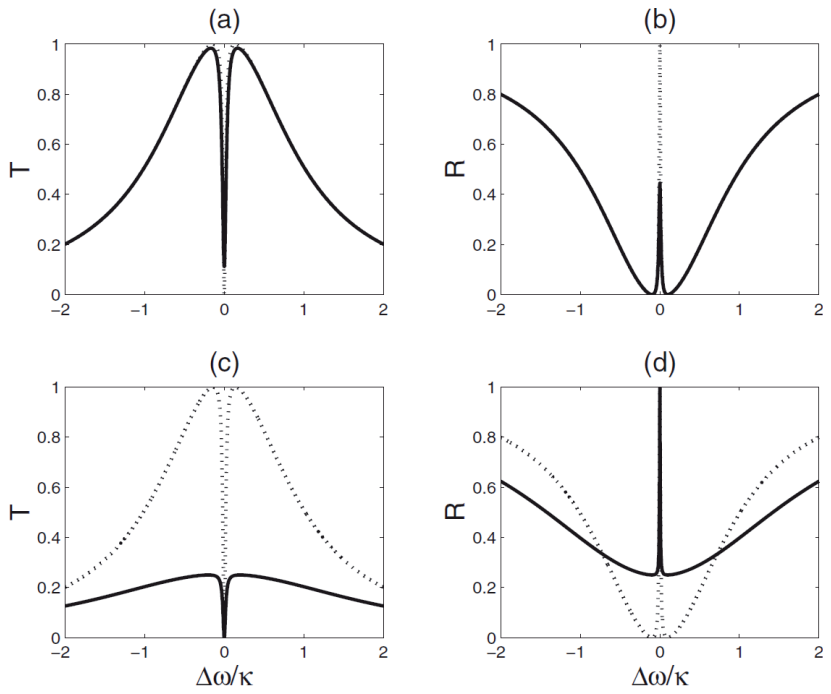


FIGURE 6.5 – Evolution de $T$ et $R$ pour différentes valeurs de $f$ et de $Q/Q_0$. Les traits pointillés correspondent au cas idéal $Q/Q_0 = 1$ et $f \to \infty$. En traits pleins : a) et b) $Q = Q_0$ et $f = 2$, c) et d) $Q/Q_0 = 1/2$ et $f \to \infty$. Figure extraite de [119]

L'influence de ces pertes n'est pas exactement la même selon que l'on adopte un schéma expérimental en transmission on en réflexion. En effet, dans un schéma en transmission, on détecte un signal "sur fond blanc", dont le contraste diminue en fonction de l'importance des pertes. Dans le cas d'un schéma en réflexion, on détecte cette fois un signal "sur fond noir", et dans ce cas la perte de contraste s'accompagne d'une augmentation du bruit qui peut nuire aux observations. On doit dans ce cas faire face au même dilemme qu'évoqué dans la partie 2.3.4 et trouver le bon compromis entre la valeur du facteur de Purcell et le rapport $Q/Q_0$ (voir aussi figure 6.13).

## 6.2 Solution expérimentale

On se propose ici d'étudier plus particulièrement la possibilité de réaliser un tel système à partir de boîtes quantiques et de microcavités semi-conductrices, à partir notamment des critères établis dans la section précédente.

On considère tout d'abord la possibilité d'obtenir un système à deux niveaux à partir de l'état fondamental $|G\rangle$ et du premier état exité $|X\rangle$ d'une boîte quantique. Pour cela, un apercu de la structure fine de ses niveaux est nécessaire. En effet, comme nous l'avons déjà dit, l'exciton est en réalité composé d'un électron de spin $\pm\frac{1}{2}$ et d'un trou lourd de spin $\pm\pm\frac{3}{2}$ et possède donc quatre projections de spin : 1, $-1$, 2 et $-2$. Les deux dernières n'étant pas couplées au champ électromagnétique, nous ne les considérerons pas davantage. Pour une boîte quantique parfaitement symétrique autour de son axe de croissance, l'état excitonique est donc dégénéré deux fois, comme représenté à la figure 6.6. On obtient dans ce cas un système à deux niveaux couplé à toutes les polarisations du champ, qui satisfait les critères requis. En revanche, dans le cas d'une boîte quantique asymétrique, l'interaction d'échange lève la dégénérescence et conduit à l'apparition de deux transitions polarisées linéairement dans des directions orthogonales. Il a toutefois été montré que sous pompage résonnant et à basse température, le taux de spin flip permettant de passer de l'un des niveaux excités à l'autre est négligeable devant les temps de relaxation [121]. Il est donc toujours possible, en choisissant une des directions de polarisation privilégiée, de traiter la boîte quantique comme un système à deux niveaux. La boîte quantique constitue donc une bonne solution "solide" pour obtenir un milieu non-linéaire à l'échelle du photon unique.

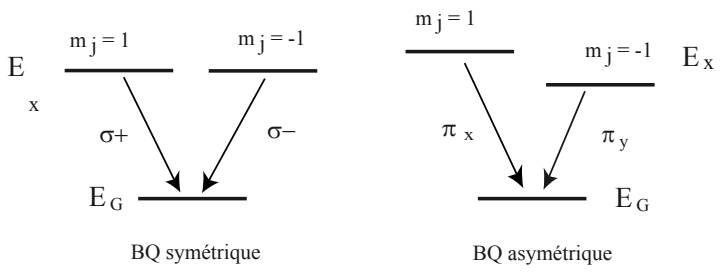


FIGURE 6.6 – Schéma représentant la structure fine associée aux états "brillants" d'une boîte quantique. $\sigma+$ ($\sigma-$) et $\pi_x$ ($\pi_y$) représentent les polarisations circulaires et linéaires du champ.

Le second point concerne le choix de la cavité. On peut constater que les critères établis dans la section précédente pour obtenir un système performant sont identiques à ceux que l'on avait formulés pour obtenir une bonne source de photons uniques (voir partie 2.3.4). Dans les deux cas un $\beta$ proche de un est souhaitable, de même qu'un rapport $Q/Q_0$ unitaire. D'autre part la problématique de recouvrement entre le diagramme de rayonnement du pilier et l'ouverture numérique de l'objectif est là encore similaire. En réalité les deux problèmes sont

tout à fait symétriques étant donné que dans un cas on cherche à extraire les photons émis le plus efficacement possible tandis que dans l'autre on souhaite que l'absorption du champ incident soit maximale. Notre proposition consiste donc à utiliser des micropiliers, dont le succès pour réaliser des sources de photons uniques a déjà été démontré [48].

Enfin, on notera qu'il est important que la cavité présente une grande finesse, de sorte que l'on puisse résumer l'interaction à celle d'un atome avec un mode de champ unique.

## 6.3 Stratégies expérimentales pour la mesure de non-linéarités

### 6.3.1 Schéma expérimental

Afin de mettre la non-linéarité en évidence, nous avons mis en place le montage de réflectivité décrit à la figure 6.7. L'excitation se fait au moyen d'une diode laser accordable en fréquence entre 900 et 960 $nm$ (voir section 3.1.2). On prélève une fraction du faisceau, qui est analysée par un interféromètre de Fabry-Pérot (F-P), nous permettant de vérifier le fonctionnement monomode de la diode. Le faisceau principal est ensuite couplé dans une fibre optique monomode disposée après le lame séparatrice. La lentille du coupleur de sortie est calibrée de telle sorte que le faisceau émergent recouvre toute la surface de la lentille de l'objectif, afin d'en utiliser tout le pouvoir de résolution. Le faisceau réfléchi est envoyé vers le spectromètre et la caméra CCD, à partir de laquelle on réalise le comptage. Ce montage est entièrement intégré dans le dispositif de micro-PL décrit précédement et utilisé pour le repérage initial. L'utilisation de la fibre procure un double avantage. D'une part, elle permet de corriger le profil spatial du champ incident et ainsi d'optimiser le couplage avec le mode du micropilier, d'autre part elle assure un alignement parfait entre les faisceaux des différentes sources (non-résonnante et résonnante) utilisées au cours de l'expérience.

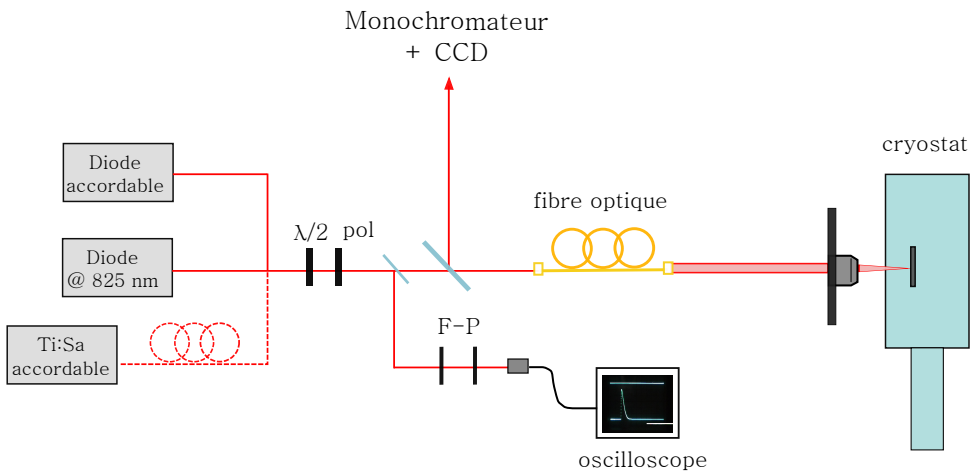


FIGURE 6.7 – Schéma du montage de réflectivité.

Nous avons envisagé deux approches pour mettre en évidence la réflexion induite par dipôle, complémentaires en terme de résolution spectrale et que nous allons présenter maintenant.

### 6.3.2 Balayage de la résonance par la diode laser

La première approche consiste à réaliser un balayage de la boîte quantique en résonance avec la cavité au moyen d'une diode laser de grande finesse. Pour ce faire, nous utilisons une diode spécifique (voir DL100 à la partie 3.1.2), possédant une cavité externe constituée d'un réseau et du miroir arrière de la diode laser. Cette cavité peut être accordée mécaniquement pour un réglage grossier ou au moyen d'une cale piezo-électrique pour le réglage fin (voir figure 6.8). En agissant sur la cale piezo-électrique, il est alors possible d'obtenir un balayage automatisé des longueurs d'onde sur plusieurs dizaines de $\mu eV$.

L'émission laser dépend du recouvrement entre les modes internes et les modes externes de la diode (ainsi que du profil du réseau et du gain du milieu actif), qui doivent être superposés pour un fonctionnement optimal. Au cours du balayage, un système d'asservissement en courant permet alors d'ajuster la position spectrale des modes internes au déplacement des modes externes. Le balayage en longueur d'onde s'accompagne d'une variation de la puissance de sortie associée à la différence de courant nécessaire pour déplacer les modes internes de la diode (voir figure 6.11). En optimisant les réglages, nous parvenons à un balayage sans saut de mode et stable en puissance sur une plage spectrale de $\sim 30\ \mu eV$. Il est également possible de régler la vitesse du balayage. Les taux de balayages minimum et maximum sont de $= 0.003Hz$ et $10\ KHz$.

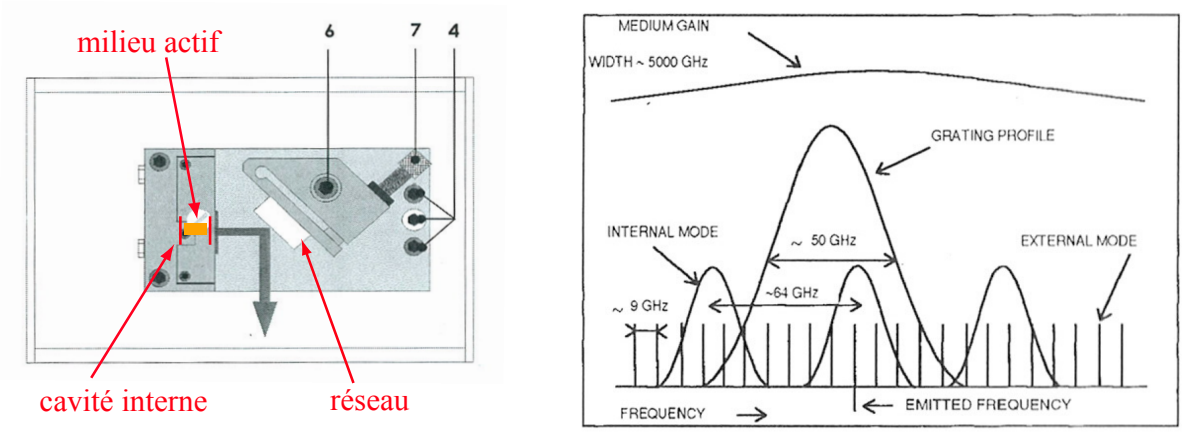


FIGURE 6.8 – a) Schéma de la DL100 vue du dessus. La position du réseau peut être ajusté grossièrement au moyen de la vis 6 ou plus finement avec la vis micrométrique 7. b) Représentation des facteurs déterminant l'émission laser monomode.

On peut donc constater que la largeur du balayage sans sauts de mode est relativement limitée, ce qui limite l'utilisation de cette technique à des boîtes quantiques de faibles largeurs. D'autre part, le matériel livré par le constructeur ne dispose d'aucun contrôle sur le déclenchement du balayage, qui ne peut qu'être "activé" ou "désactivé". Il est donc extrêmement délicat de superposer le résultat de plusieurs balayages et le temps d'intégration doit être fixé en fonction de la résolution souhaitée pour une largeur de balayage donnée. Ainsi par exemple, pour une largeur de scan de $\Delta E = 30\ \mu eV$ avec une résolution de $1\ \mu eV$, le temps d'intégration

est fixé à 5 $s$. Il est donc nécessaire de concevoir un dispositif capable de contrôler la diode de manière externe de sorte que les paramètres du balayage soient réglables par l'utilisateur. Pour ce faire, nous développons actuellement un programme capable de générer les tensions adéquates et qui communiquera avec le module Toptica au moyen d'une carte de conversion digital/analogique.

L'avantage de cette technique est que l'on peut atteindre une excellente résolution spectrale. En effet, la largeur spectrale de la raie laser annoncée par le constructeur est de 100 $MHz$, soit $0.4\mu eV$. Bien qu'une telle précision ne soit pas nécessairement requise, ce dernier point peut cependant s'avérer précieux dans le cadre d'une étude précise de la largeur homogène d'une boîte quantique par exemple.

### 6.3.3 Balayage en température

La seconde approche consiste à fixer la position du laser et à déplacer cette fois la boîte quantique et la cavité au moyen de la température. Ce principe est représenté sur la figure 6.9, où l'on a fixé la position de la raie laser de façon à sonder la boîte quantique au moment où elle est résonnante avec la cavité (effet de réflexion maximal). Au cours de cette expérience, la température est asservie à $0.1K$ près, ce qui correspond à un déplacement de la boîte quantique de $6\mu eV$. La résolution est donc nettement moins bonne que dans le cas précédent et la méthode n'est pas appropriée dans le cas de boîtes fines (FWHM$< 10\mu eV$). En revanche, à chaque point, le temps d'intégration peut être arbitrairement long, et d'autre part il est envisageable de réaliser un scan sur une largeur aussi grande que celle de la cavité. Ainsi par exemple, une variation de température de 30 $K$ permet de déplacer le mode de cavité de 0.15 $nm$ ($\sim$ 200 $\mu eV$), soit une fois sa largeur à mi-hauteur. Pour des variations de température supérieures, les effets de la dilatation thermique sur l'alignement doivent être pris en compte.

## 6.4 Simulations

Dans les chapitres précédents, nous avons particulièrement étudié le cas d'une boîte quantique, couplée à un micropilier de $1.8\mu m$ de diamètre dans le régime de Purcell. On se propose dans cette partie d'évaluer le potentiel de ce candidat pour réaliser la non-linéarité géante décrite plus haut. Nous chercherons donc à quantifier l'effet attendu aussi précisément que possible en fonction des paramètres expérimentaux et nous établirons sous quelles conditions cet effet peut être observé.

Les paramètres caractéristiques du système sont rassemblés dans le tableau 6.1, où l'on peut voir que la seule grandeur non-mesurée est le déphasage pur $\gamma^*$. Pour simplifier, nous supposerons dans un premier temps $\gamma^* = 0$, hypothèse sur laquelle nous reviendrons en fin de partie.

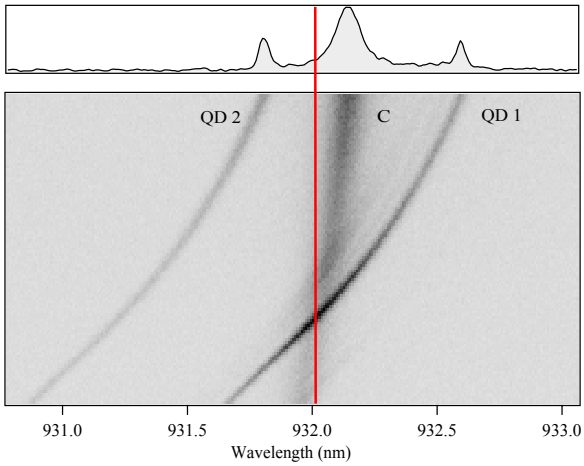


FIGURE 6.9 – Photoluminescence d'une boîte quantique en fonction de la température. Le trait vertical représente la position du laser pour sonder la boîte quantique lorsqu'elle est à résonance avec la cavité.

| | |
|---|---|
| $\gamma$ | $1\ GHz\ \simeq\ 4.2\ \mu eV$ |
| $\gamma^*$ | inconnu |
| $\kappa$ | $\sim 200\ \mu eV$ |
| $Q$ | 7500 |
| diamètre du pilier | $1.8\mu m$ |
| $F$ | 3 |

TABLE 6.1 – Caractéristiques du système boîte quantique-micropilier étudié dans les chapitres précédents.

### Valeur du signal attendu

Avant de poursuivre, il est nécessaire de quantifier la fraction du champ incident réellement couplée dans le micropilier lors de notre expérience. En effet, jusqu'à maintenant, nous avons considéré le cas d'un couplage parfait, réduisant les pertes du système à celles de la cavité, or nous allons voir que la prise en compte du couplage réel modifie de manière conséquente le spectre de réflectivité. Une valeur du couplage plus réaliste peut être obtenue à partir du spectre de réflectivité de la figure 6.10a réalisé sur la cavité vide. Le spectre est normalisé de telle sorte que la réflexion soit totale hors de la cavité, et le creux indique la résonance de la cavité. On mesure au minimum de la réflectivité $R^*_{min} = 0.8$.

Dans le cas d'un couplage parfait, la valeur de réflectivité est donné par l'équation 6.5, soit dans notre cas $R_{min} = 0.21$. On remonte ensuite à la valeur du couplage en faisant l'hypothèse que toute la lumière qui n'est pas couplée est réfléchie et renvoyée vers l'objectif. $R_{min}$ et $R^*_{min}$ sont alors reliés par l'expression suivante

$$R^*_{min} = 0.8 = (1 - C) + CR_{min} \tag{6.8}$$

où $C$ représente l'intégrale de recouvrement entre le mode du champ incident et le mode de la cavité. On notera que cette hypothèse correspond à la situation la plus défavorable puisque dans ce cas, toute le lumière qui n'est pas couplée participe au fond lumineux du spectre de réflectivité, et à terme, noie le signal utile dans le bruit. Le résultat du calcul donne $C = 25\%$.

On se place ensuite dans le cas où la boîte quantique est résonnante avec le mode de cavité. Une description schématique du spectre de réflectivité attendu est donné à la figure 6.10b, où sont reportées les différents grandeurs caractéristiques. On retrouve le profil de la cavité assorti d'un pic de réflectivité à résonance dû à la présence de la boîte quantique. La hauteur de ce pic est repérée par $R^*_{max}$, qui tient également compte de la valeur du couplage $C$. On donne alors la valeur du pic de réflectivité attendu en fonction de la puissance (voir 6.10c). A forte puissance, on retrouve comme attendu le résultat de la cavité vide (soit $R^*_{max} = R^*_{min} = 0.8$), tandis que pour des faibles valeurs de puissance, la valeur du pic de réflectivité induite par la boîte quantique tend vers 0.94. On a également porté en regard le cas du couplage parfait pour lequel $0.22 \leq R^*_{max} = R_{max} \leq 0.75$.

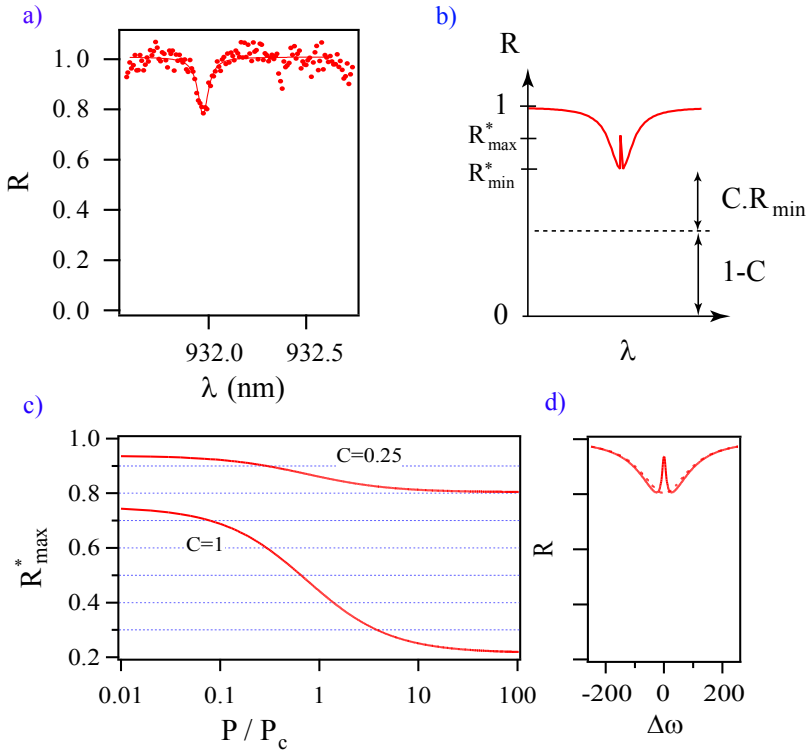


FIGURE 6.10 – a) Spectre de réflectivité de la cavité vide. b) Schéma représentant les différentes contributions d'un spectre de réflectivité. c) Puissance réfléchie par la boîte quantique en fonction de la puissance du champ incident. $P_c = P_{sat}/4$ correspond à la puissance critique nécessaire pour saturer le système. d) Spectre de réflectivité attendu du système atome-cavité pour $P \ll P_c$.

### Estimation du bruit

On se propose maintenant de donner une estimation du bruit attendu, afin d'identifier sous quelles conditions le signal peut être observé. Les sources de bruit connues sont les suivantes

- le bruit CCD, qui se décompose en un bruit de lecture $\Delta_{lect}$ et un bruit $\Delta_{co}$ associé au courant d'obscurité (voir section 3.1.4)

$$\Delta_{CCD}^2 = \Delta_{lect}^2 + \Delta_{co}^2 \tag{6.9}$$

  Les deux composantes peuvent être évaluées à partir des résultats de la partie 3.1.4, soit, en nombre de coups

$$\begin{aligned} \Delta_{lect}^2 &= 4.2^2 \\ \Delta_{co}^2 &= 0.003 \times m \times t_{int} \end{aligned} \tag{6.10}$$

  où $m$ est le nombre de pixels de la zone intégrée et $t_{int}$ le temps d'intégration en secondes.
- Le bruit de photons $\Delta_{phot}$, dont l'amplitude évolue en $\sqrt{N}$, où $N$ est le nombre de photons.

Le bruit théorique s'écrit donc

$$\Delta = \sqrt{\Delta_{lect}^2 + \Delta_{c.o}^2 + \Delta_{phot}^2} \tag{6.11}$$

Pour confirmer ces prédictions, nous avons enregistré l'évolution de l'intensité de la diode laser après réflexion sur le substrat au cours du temps. La zone intégrée correspond à $10 \times 100$ pixels, d'où $\Delta_{co}^2 = 3 \times t_{int}$. Le résultat est reporté à la figure 6.11. Dans le cas a), la longueur d'onde est maintenue fixe tandis que dans le cas b) on effectue un balayage $\Delta\lambda \simeq 0.03\ nm$. Le calcul du bruit théorique donne alors, dans le cas a), $\Delta = \sqrt{4^2 + 3^2 + 118^2} = 118\ cps/sec$, à comparer à l'écart type mesuré $\sigma = 145\ cps/sec$, et dans le cas b), $\Delta = \sqrt{4^2 + 3^2 + 236^2} = 236\ cps/sec$, à comparer à $\sigma = 264\ cps/sec$. Dans les deux situations les valeurs sont proches, la différence étant attribuée aux fluctuations d'intensité de la diode laser.

### Evaluation du rapport signal sur bruit

La première étape vers la mesure de la non-linéarité consiste à mettre en évidence l'absorption d'une boîte quantique. On se propose donc ici de calculer le rapport signal sur bruit pour un exemple de puissance incidente largement inférieure au seuil de saturation, afin d'étudier la faisabilité d'une telle expérience. On choisit $P = P_c/8 = P_{sat}/32$ et pour lequel $R_{max} = 0.92$ est presque maximal. Afin de calibrer la puissance du laser incident et de connaître la puissance incidente, on réalise une montée en puissance (expérience de micro-PL non résonnante), qui nous permet de déterminer le niveau de saturation de la boîte quantique. On relève alors sur la CCD l'intensité correspondante à cette saturation, puis on ajuste la puissance du laser résonnant de telle sorte que l'intensité détectée après réflexion soit égale à l'intensité de saturation de la boîte quantique. Ce résultat nous permet d'obtenir une bonne estimation de la puissance incidente. Il faut toutefois tenir compte du couplage du faisceau incident pour obtenir un résultat tout à fait quantitatif.

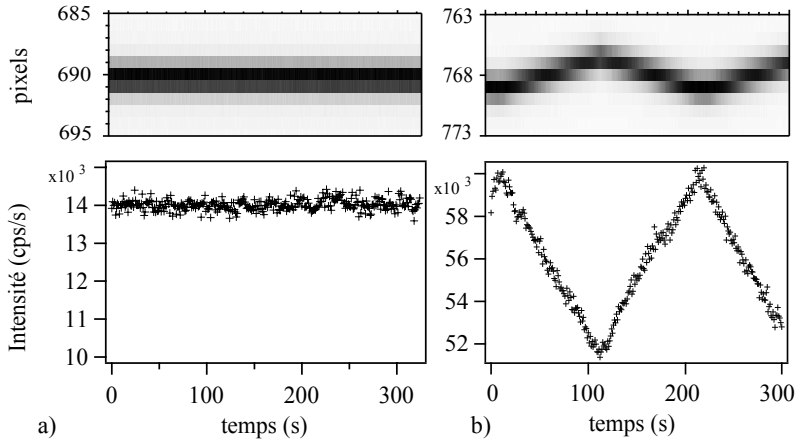


FIGURE 6.11 – a) Intensité du signal laser réfléchi sur le substrat au cours du temps. Chaque point correspond à une seconde d'intégration. b) Idem dans le cas d'un balayage de 0.03 $nm$.

L'intensité détectée par seconde sur la CCD pour une puissance incidente donnée est notée $n$ et vaut $n = 100$ $cps/s$ pour $P = P_c/8 = P_{sat}/32$. L'intégration est effectuée sur une surface de $10 \times 10$ pixels, d'où $\Delta^2_{c.o} = 0.3 \times t_{int}$.
On calcule alors le signal $s$ attendu

$$s = (R^*_{max} - R^*_{min}) \times n \times t_{int} = 0.12 \times 100 \times t_{int} \tag{6.12}$$

ainsi que le bruit théorique

$$\Delta^2 = \Delta^2_{lect} + \Delta^2_{c.o} + R^*_{min} \times n \times t_{int} = 18 + 0.3 \times t_{int} + 0.8 \times 100 \times t_{int} \tag{6.13}$$

Ces deux fonctions sont tracées sur la figure 6.12 montrant l'intensité du signal attendu en fonction du temps d'intégration, ainsi que le bruit estimé théoriquement. On constate qu'avec la valeur de couplage actuelle, le signal est totalement noyé dans le bruit pour des temps d'intégration inférieurs à 2 secondes (courbes bleues et rouges en trait plein). Il est nécessaire d'intégrer le signal pendant 8 secondes pour obtenir un rapport signal sur bruit de 5. En revanche, ce résultat peut être largement amélioré en optimisant le recouvrement entre les modes du champ et de la cavité, ce qui est envisageable dans notre cas.

Pour finir revenons sur l'hypothèse concernant la valeur de $\gamma^*$. Dans les calculs précédents, nous avons supposé sa valeur nulle, ce qui conduit aux meilleurs résultats. En effet, les équations 6.7 montrent que pour $\gamma^* \neq 0$, la valeur de $f$ diminue, ce qui se traduit par une diminution de la valeur de réflectivité à résonance. Ainsi pour $\gamma^* = 8$ $\mu eV$, par exemple, on obtient $R_{max} = 0.85$ (pour la même puissance $P = P_c/8$ que précédemment) et dans ce cas il faut intégrer sur des durées supérieures à 30 seconde pour obtenir le même rapport signal sur bruit de 5 (voir figure 6.12). S'il est impossible pour nous de mesurer exactement sa valeur, nous pouvons tout du moins fixer une borne supérieure. En effet, nous observons sous excitation

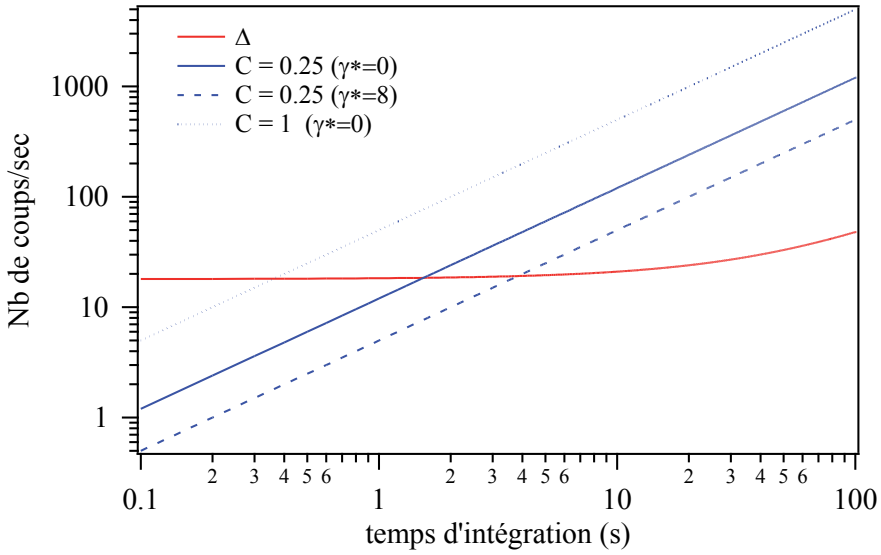


FIGURE 6.12 – En bleu : valeur du signal attendu sur la CCD en nombre de coups. Le trait plein correspond à la situation ($C = 0.25, \gamma^* = 0$), le trait tireté à ($C = 0.25, \gamma^* = 8$) et les pointillés au cas ($C = 1, \gamma^* = 0$). En rouge, bruit estimé en nombre de coups.

non-résonnante, des raies dont la largeur est inférieure à la résolution instrumentale, ce qui indique que $\gamma + \gamma^* \leq 12\mu eV$, soit $\gamma^* \leq 8\mu eV$. D'autre part, il a déjà été montré dans le cas de boîtes quantiques InAs, que le déphasage pur est négligeable sous excitation résonnante [122]. Il est donc vraisemblable que son influence soit minimale dans ce type d'expériences.

## 6.5 Conclusions et perspectives

Une boîte quantique couplée à un micropilier constitue donc un système particulièrement intéressant pour l'observation d'une non-linéarité au seuil du photon unique dans des dispositifs solides. La possibilité d'atteindre des couplages élevés entre le champ incident et le mode de cavité[1] constitue un avantage de ce type de systèmes notamment par rapport aux cristaux photoniques et aux microdisques. Nous pensons que cet effet pourra être mis en évidence sur notre système dans un futur proche, grâce notamment aux dernières améliorations du dispositif expérimental, qui permettront de contrôler le balayage précisément, et d'intégrer aussi longtemps que souhaité à une position donnée. Nous estimons par ailleurs que l'adaptation entre le mode incident et celui de la cavité peut être améliorée, ce qui nous permettrait d'augmenter le contraste de manière significative.

On notera par ailleurs que le choix du diamètre du pilier, peut permettre d'améliorer l'effet attendu. La figure 6.13 donne la visibilité attendue, définie par $v = R_{max} - R_{min}$, en fonction du diamètre. On peut remarquer que la visibilité maximum est atteinte pour un diamètre plus grand que celui correspondant au facteur de Purcell maximum. Cela est dû au fait qu'aux

1. Nous avons mesuré des valeurs de réflectivité allant jusqu'à 85% pour des micropiliers de 6 $\mu m$ de diamètre.

petits diamètres les pertes $Q/Q_0$ sont plus importantes, ce qui entre également dans le calcul de la visibilité (voir équation 6.6). Ce résultat, obtenu dans le cas d'un couplage de 100%, à partir du facteur de qualité mesuré et du facteur de Purcell théorique de la cavité montre la présence d'un optimum autour de 3.5 $\mu m$. Néanmoins, les simulations présentées dans ce chapitre montre qu'un bon résultat peut également être obtenu à partir d'un facteur de Purcell modeste dans un contexte expérimental réaliste.

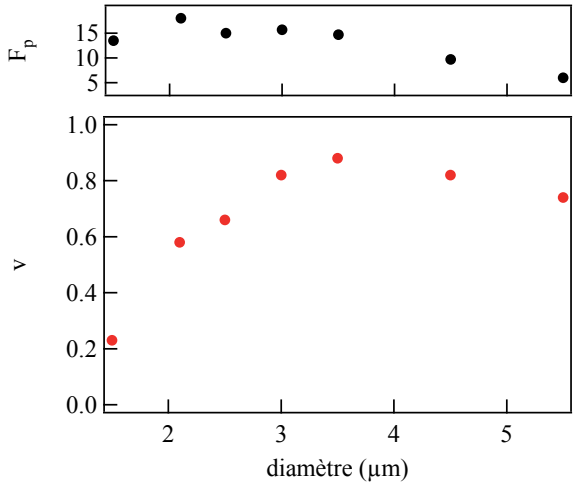


FIGURE 6.13 – Contraste du signal de réflexion induite par dipole. Les valeurs théorique du facteur de Purcell, calculées pour chaque diamètre, sont portées en regard (courbe du haut).

Enfin, on notera que la réflectivité induite par dipole a été observé très récemment dans des structures similaires, à la limite du couplage fort [123], et pour une boîte quantique faiblement couplée à un cristal photonique [124].

# Chapitre 7

# Conclusion

Les expériences présentées dans ce mémoire concernent l'étude d'une boîte quantique unique couplée à un micropilier dans le régime de couplage faible. Nous avons réalisé une mesure détaillée de l'effet Purcell, qui constitue un facteur de mérite de l'électrodynamique quantique en cavité (EDQC), en utilisant différentes techniques combinant des méthodes résolues en temps et sous excitation continue. L'objectif de cette étude était d'une part de comparer ces méthodes entre elles, afin notamment de vérifier la compatibilité des résultats proposés dans la littérature, qui utilisent l'une ou l'autre de ces techniques, et d'autre part de dégager des critères permettant de choisir entre les différentes méthodes en fonction du système étudié.

Dans le régime d'excitation continue, la modification du taux d'émission spontanée peut être mise en évidence à partir de l'étude des puissances et intensités de saturation. Ces deux méthodes ont déjà été utilisées par le passé dans la littérature pour estimer le facteur de Purcell. Nous avons également mesuré le facteur de Purcell à partir d'une méthode originale, suggérée dans [94] et fondée sur une comparaison entre le comportement d'émission de la boîte quantique sous la saturation et à saturation en fonction du désaccord. L'ensemble de ces résultats a ensuite été comparé à la méthode historique reposant sur des mesures résolues en temps. En conclusion, cette étude montre que les méthodes sont compatibles entre elles dans la limite des barres d'erreur. On constate en revanche qu'elles ne sont pas équivalentes et génèrent des incertitudes plus ou moins grandes, la méthode la plus précise étant la mesure résolue en temps (erreur inférieure à 20%).

En ce qui concerne les méthodes en continu, les mesures ont été réalisées sous pompage non-résonnant à des températures comprises entre 5 $K$ et 30 $K$ pour lesquelles le rendement radiatif est supposé unitaire. On indique également que notre modèle néglige le temps de capture des charges vers les états de la boîte. Pour effectuer une mesure du facteur de Purcell, on pourra à l'avenir considérer les point suivants.

D'une façon générale, la mise en place d'une méthode fiable pour mesurer le facteur de qualité d'une cavité contenant un matériau actif devra être réalisée. En effet, nous avons pu mettre en évidence une différence systématique de 10% entre les valeurs obtenues lors d'une expérience de micro-PL et par réflectivité. Cette étape apparaît d'autant plus importante que nous avons pu constater une dépendance parfois importante vis à vis de ce paramètre.

D'autre part, nous avons pu mettre en évidence une augmentation de l'efficacité du pompage avec la température, qui est associée à un processus de capture des charges plus efficace à haute température. Si ces résultats n'affectent pas les mesures à partir des intensités de PL, cet effet doit en revanche être pris en compte lors des mesures en fonction de la puissance de saturation lorsque la température est utilisée pour modifier l'accord entre la boîte quantique et le mode de la cavité. Nous montrons cependant qu'il est possible, dans ce dernier cas, de dériver une valeur du facteur de Purcell à partir d'une description phénoménologique de cet effet.

Il a également été observé que les processus de capture de charge dépendent de la puissance et de la longueur d'onde d'excitation [103]. Lors d'une excitation dans la couche de mouillage, le nombre de porteurs créés est proportionnel à la puissance de pompe. Il existe alors un seuil au delà duquel les processus de relaxation sont assistés par effet Auger, ce qui se traduit par une diminution du temps de relaxation. Nous indiquons cependant que cet effet est observé pour des puissances de l'ordre de $1 - 10\ W/cm^2$ [125, 103], supérieures au régime dans lequel notre étude est conduite ($P \leq 0.1\ W/cm^2$). Enfin, il est à noter que la méthode basée sur la mesure d'intensité à puissance de pompe fixée ne dépend pas de cet effet.

Le dernier point important concerne la description du spectre de micro-PL. Plusieurs travaux récents ont en effet montré qu'une boîte quantique même désaccordée peut émettre des photons à la longueur d'onde de la cavité par le biais du couplage aux phonons acoustiques du réseau [110, 46, 98], ou via des effets de diffusion spectrale [47]. Dans les résultats présentés dans ce mémoire, cette fraction de l'émission est négligée lors de l'ajustement. Cette approximation est justifiée a posteriori au vu de la compatibilité des résultats obtenus sous excitation continue et dans le régime impulsionnel, et des observations du chapitre 5.3. Ce point doit toutefois être considéré avec attention notamment dans le cas de systèmes à la limite du couplage fort, ou présentant des facteurs de qualité importants, puisque l'ensemble des résultats obtenus sous excitation continue en dépend.

En ce qui concerne les expériences résolues en temps, nous avons mis en évidence l'influence des émetteurs désaccordés sur la mesure du temps de déclin dans le cas résonnant. On observe, dans ce cas, deux constantes de temps dont l'une correspond au temps de vie de la boîte diminué par l'effet Purcell et l'autre au fond de luminescence associé aux émetteurs désaccordés. Ce résultat, déjà observé par Kaniber et. al. [45] est ici expliqué au moyen d'un modèle simple qui permet de rendre compte de nos résultats expérimentaux avec une bonne fidélité. La mesure du facteur de Purcell par des mesures résolues en temps reste donc la méthode de référence pour peu qu'elle puisse être appliquée.

L'ensemble de ces travaux montrent à quel point l'EDQC en physique du solide et notamment dans les boîtes quantiques semiconductrices s'écarte du modèle de la physique atomique. En effet, la décohérence intrinsèque, associée à la matrice environnante, distingue fondamentalement ces systèmes du cas idéal de l'atome isolé. Est il possible de tirer parti de ce couplage à l'environnement ? L'augmentation des facteurs de qualité laisse aujourd'hui entrevoir l'apparition d'un nouveau régime de l'EDQC pour lequel la largeur de la boîte quantique est supérieure à celle de la cavité. Il a été montré que, dans ce cas, le spectre d'émission de la boîte quantique

est complètement modifié par la présence de la cavité [47]. Il est alors possible d'envisager des situations pour lesquelles les photons émis par le système portent les caractéristiques de la cavité, et ce même pour un émetteur désaccordé . La décohérence peut alors être vue comme une ressource supplémentaire. Dans l'avenir, les boîtes quantiques pourraient devenir des atomes "à environnement contrôlable" et former des systèmes modèles permettant d'explorer des régimes nouveaux de l'EDQC.

Enfin, les simulations réalisées dans le dernier chapitre indiquent que l'observation de l'absorption d'un champ cohérent par une boîte quantique unique est faisable à partir d'un système présentant un facteur de Purcell modeste, comme celui qui est étudié dans ce mémoire. Le dispositif expérimental est désormais bien maîtrisé et les dernières améliorations devraient permettre d'observer cet effet et de réaliser une mesure de non-linéarité optique.

On notera pour finir l'apparition de nouvelles géométries prometteuses pour réaliser un atome unidimensionnel à partir de guides d'onde ne présentant pas de résonance. Ainsi par exemple, Lecamp. et. al ont prédit des valeurs de couplage entre une boîte quantique et un guide d'onde réalisé dans un cristal photonique aussi hautes que $\beta = 95\%$ [126]. Récemment, des valeurs proches de 90% ont été mesurée expérimentalement, confirmant ainsi le potentiel de ces systèmes [127]. On peut également imaginer une solution à partir de fils photoniques, dont la géométrie peut être adaptée pour obtenir des efficacités d'extraction supérieures à 90% [128], ce qui offrirait l'avantage d'une transmission à bande spectrale plus large.

# Bibliographie


[1] E.M Purcell, "*Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*", *Phys Rev* (1946), vol. 69, p. 681.

[2] Daniel Kleppner, "*Inhibited Spontaneous Emission*", *Phys. Rev. Lett.* (1981), vol. 47, no. 4, p. 233.

[3] P. Goy, J. M Raimond, M. Gross, et S. Haroche, "*Observation of Cavity-Enhanced Single-Atom Spontaneous Emission*", *Phys. Rev. Lett.* (1983), vol. 50, no. 24, p. 1903.

[4] Randall G Hulet, Eric S Hilfer, et Daniel Kleppner, "*Inhibited Spontaneous Emission by a Rydberg Atom*", *Phys. Rev. Lett.* (1985), vol. 55, p. 2137.

[5] D. J Heinzen, J. J Childs, J. E Thomas, et M. S Feld, "*Enhanced and inhibited visible spontaneous emission by atoms in a confocal resonator*", *Phys. Rev. Lett.* (1987), vol. 58, p. 1320.

[6] Y. Kaluzny, P. Goy, M. Gross, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Observation of Self-Induced Rabi Oscillations in Two-Level Atoms Excited Inside a Resonant Cavity : The Ringing Regime of Superradiance*", *Phys. Rev. Lett.* (1983), vol. 51, p. 1175.

[7] E.T Jaynes et F.W. Cummings, "*Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser*", *Proc. IEEE* (1963), vol. 51, no. 81.

[8] Gerhard Rempe, Herbert Walther, et Norbert Klein, "*Observation of quantum collapse and revival in a one-atom maser*", *Phys. Rev. Lett.* (1987), vol. 58, no. 4, p. 353.

[9] G. Rempe, R. J Thompson, R. J Brecha, W. D Lee, et H. J Kimble, "*Optical bistability and photon statistics in cavity quantum electrodynamics*", *Phys. Rev. Lett.* (1991), vol. 67, p. 1727.

[10] S. Kuhr, S. Gleyzes, C. Guerlin, J. Bernu, U. B. Hoff, S. Deleglise, S. Osnaghi, M. Brune, J.-M. Raimond, S. Haroche, E. Jacques, P. Bosland, et B. Visentin, "*Ultrahigh finesse Fabry-P[e-acute]rot superconducting resonator*", *Applied Physics Letters* (2007), vol. 90, no. 16, p. 164101.

[11] E. Hagley, X. Maitre, G. Nogues, C. Wunderlich, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Generation of Einstein-Podolsky-Rosen Pairs of Atoms*", *Phys. Rev. Lett.* (1997), vol. 79, no. 1, p. 1.

[12] A. Rauschenbeutel, P. Bertet, S. Osnaghi, G. Nogues, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Controlled entanglement of two field modes in a cavity quantum electrodynamics experiment*", *Phys. Rev. A* (2001), vol. 64, p. 050301.

[13] A. Rauschenbeutel, G. Nogues, S. Osnaghi, P. Bertet, M. Brune, J. -M Raimond, et S. Haroche, "*Step-by-Step Engineered Multiparticle Entanglement*", *Science* (2000), vol. 288, no. 5473, p. 2024.

[14] S. Osnaghi, P. Bertet, A. Auffeves, P. Maioli, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Coherent Control of an Atomic Collision in a Cavity*", *Phys. Rev. Lett.* (2001), vol. 87, no. 3, p. 037902.

[15] A. Auffeves, P. Maioli, T. Meunier, S. Gleyzes, G. Nogues, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Entanglement of a Mesoscopic Field with an Atom Induced by Photon Graininess in a Cavity*", *Phys. Rev. Lett.* (2003), vol. 91, p. 230405.

[16] T. Meunier, S. Gleyzes, P. Maioli, A. Auffeves, G. Nogues, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Rabi Oscillations Revival Induced by Time Reversal : A Test of Mesoscopic Quantum Coherence*", *Phys. Rev. Lett.* (2005), vol. 94, no. 1, p. 010401.

[17] J Rarity, "*Quantum random-number generation and key sharing*", *Journal of Modern Optics* (1994), vol. 41, p. 2435.

[18] R.P Feynman, "*Simulating physics with computers*", *International Journal of theoretical physics* (1982), vol. 21, p. 467.

[19] I.L Chuang et M.A Nielsen, *Quantum computation and quantum information.* cambridge university press ed., 2000.

[20] P.W Shor, "*Algorithms for quantum computation : discrete logarithms and factoring*", *IEEE Computer Society Press* (1994).

[21] A. Muller, H. Zbinden, et N Gisin, "*Quantum cryptography over 23 km in installed underlake telecom fiber*", *Europhysics Letter* (1996), vol. 33, p. 335.

[22] Q. A Turchette, C. J Hood, W. Lange, H. Mabuchi, et H. J Kimble, "*Measurement of Conditional Phase Shifts for Quantum Logic*", *Phys. Rev. Lett.* (1995), vol. 75, p. 4710.

[23] A. Rauschenbeutel, G. Nogues, S. Osnaghi, P. Bertet, M. Brune, J. M Raimond, et S. Haroche, "*Coherent Operation of a Tunable Quantum Phase Gate in Cavity QED*", *Phys. Rev. Lett.* (1999), vol. 83, p. 5166.

[24] D. N. Matsukevich, T. Chaneliere, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, et A. Kuzmich, "*Deterministic Single Photons via Conditional Quantum Evolution*", *Physical Review Letters* (2006), vol. 97, no. 1, p. 013601.

[25] Y. Arakawa et H. Sakaki, "*Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*", *Applied Physics Letters* (1982), vol. 40, no. 11, pp. 939–941.

[26] M Asada, Y. Miyamoto, et Y Suematsu, "*Gain and the threshold of three-dimensional quantum box lasers*", *IEEE Journal of quantum electronics* (1986), vol. 9, p. 1915.

[27] Eli Yablonovitch, "*Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics*", *Phys. Rev. Lett.* (1987), vol. 58, p. 2059.

[28] J. M. Gerard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg, "*Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity*", *Physical review letters* (1998), vol. 81, no. 5, p. 1110.

[29] G. S. Solomon, M. Pelton, et Y. Yamamoto, "*Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity*", *Physical Review Letters* (2001), vol. 86, no. 17, p. 3903.

[30] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Loffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, et A. Forchel, "*Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*", *Nature* (2004), vol. 432, pp. 197–200.

[31] 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* (2004), vol. 432, pp. 200–203.

[32] David Fattal, Kyo Inoue, J. Vuckovic, Charles Santori, Glenn S. Solomon, et Yoshihisa Yamamoto, "*Entanglement Formation and Violation of Bell's Inequality with a Semiconductor Single Photon Source*", *Physical Review Letters* (2004), vol. 92, no. 3.

[33] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, et P. M. Petroff, "*Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*", *Physical Review Letters* (2006), vol. 96, no. 13, p. 130501.

[34] D. Englund, A. Faraon, I. Fushman, N. Stoltz, P. Petroff, J. Vu&ccaron, *et al.*, "*Controlling cavity reflectivity with a single quantum dot*", *Nature* (2007), vol. 450, no. 7171, p. 857.

[35] I. Fushman, D. Englund, A. Faraon, N. Stoltz, P. Petroff, et J. Vuckovic, "*Controlled phase shifts with a single quantum dot*", *Science* (2008), vol. 320, no. 5877, p. 769.

[36] Andrei Faraon, Ilya Fushman, Dirk Englund, Nick Stoltz, Pierre Petroff, et Jelena Vuckovic, "*Coherent generation of non-classical light on a chip via photon-induced tunnelling and blockade*", *Nat Phys* (2008), vol. 4, p. 859.

[37] V. Bouchiat, D. Vion, P. Joyez, D. Esteve, et M H Devoret, "*Quantum coherence with a single Cooper pair*", *Physica Scripta* (1998), vol. T76, p. 165.

[38] Y. Nakamura, Yu. A. Pashkin, et J. S. Tsai, "*Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box*", *Nature* (1999), vol. 398, p. 786.

[39] D. Vion, "*Manipulating the Quantum State of an Electrical Circuit*", *Science* (2002), vol. 296, no. 5569, p. 886.

[40] Alexandre Blais, Ren-Shou Huang, Andreas Wallraff, S. M Girvin, et R. J Schoelkopf, "*Cavity quantum electrodynamics for superconducting electrical circuits : An architecture for quantum computation*", *Phys. Rev. A* (2004), vol. 69, no. 6, p. 062320.

[41] A. Wallraff, D. I. Schuster, A. Blais, L. Frunzio, R.-S. Huang, J. Majer, S. Kumar, S. M. Girvin, et R. J. Schoelkopf, "*Strong coupling of a single photon to a superconducting qubit using circuit quantum electrodynamics*", *Nature* (2004), vol. 431, no. 7005, p. 162.

[42] Max Hofheinz, E. M. Weig, M. Ansmann, Radoslaw C. Bialczak, Erik Lucero, M. Neeley, A. D. O'Connell, H. Wang, John M. Martinis, et A. N. Cleland, "*Generation of Fock states in a superconducting quantum circuit*", *Nature* (2008), vol. 454, no. 7202, p. 310.

[43] Max Hofheinz, H. Wang, M. Ansmann, Radoslaw C. Bialczak, Erik Lucero, M. Neeley, A. D. O'Connell, D. Sank, J. Wenner, John M. Martinis, et A. N. Cleland, "*Synthesi-*

*zing arbitrary quantum states in a superconducting resonator*", *Nature* (2009), vol. 459, no. 7246, pp. 546–549.

[44] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atature, S. Gulde, S. Falt, E. L. Hu, et A. Imamoglu, "*Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot cavity system*", *Nature* (2007), vol. 445, no. 7130, p. 896.

[45] M. Kaniber, A. Laucht, A. Neumann, J. M. Villas-Boas, M. Bichler, M. C Amann, et J. J. Finley, "*Investigation of the nonresonant dot-cavity coupling in two-dimensional photonic crystal nanocavities*", *Physical Review B* (2008), vol. 77, no. 16, p. 161303.

[46] J. Suffczynski, A. Dousse, K. Gauthron, A. Lemaitre, I. Sagnes, L. Lanco, J. Bloch, P. Voisin, et P. Senellart, "*Origin of the Optical Emission within the Cavity Mode of Coupled Quantum Dot-Cavity Systems*", *Physical Review Letters* (2009), vol. 103, no. 2, p. 027401.

[47] Alexia Auffeves, Jean-Michel Gerard, et Jean-Philippe Poizat, "*Pure emitter dephasing : A resource for advanced solid-state single-photon sources*", *Physical Review A* (2009), vol. 79, no. 5.

[48] E. Moreau, I. Robert, J. M. Gerard, I. Abram, L. Manin, et V. Thierry-Mieg, "*Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities*", *Applied Physics Letters* (2001), vol. 79, no. 18, pp. 2865–2867.

[49] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S Solomon, et Y. Yamamoto, "*Indistinguishable photons from a single-photon device*", *Nature* (2002), vol. 419, no. 6907, p. 594.

[50] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaitre, I. Sagnes, I. Robert-Philip, et I. Abram, "*Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot*", *Physical Review B* (2005), vol. 72, no. 4, p. 41303.

[51] Yoanna Nowicki, *Nouvelles geometries de confinement optique pour le controle de l'emission spontanee de Boites Quantiques semiconductrices.* PhD thesis, Universite Joseph Fourier, 2008.

[52] U. Fano, "*Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts*", *Phys. Rev.* (1961), vol. 124, p. 1866.

[53] 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.* (1996), vol. 76, p. 3005.

[54] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schafer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke, et S. N. Walck, "*Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in In_ $$0.60$$ Ga_ $$0.40$$ As Quantum Dots*", *Physical Review Letters* (1999), vol. 82, no. 8, p. 1748.

[55] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L Reinecke, S. N Walck, J. P Reithmaier, F. Klopf, et F. Schafer, "*Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2002), vol. 65, p. 195315.

[56] Gabriel Bester, Selvakumar Nair, et Alex Zunger, "*Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $In_1-xGa_xAs/GaAs$ quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2003), vol. 67, p. 161306.

[57] B. Gayral, J. M. Gerard, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg, "*Optical study of GaAs/AlAs pillar microcavities with elliptical cross section*", *Applied Physics Letters* (1998), vol. 72, no. 12, pp. 1421–1423.

[58] J. M Gerard, *Single quantum dots : fundamentals, application and new concepts.*, vol. 90. P. Michler, 2003.

[59] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, et G. Le Roux, "*Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*", *Applied Physics Letters* (1985), vol. 47, no. 10, pp. 1099–1101.

[60] J.M Gerard, J.B Genin, J Lefebvre, J.M Moison, N Lebouche, et F Barthes, "*Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes.*", *Journal of crystal growth* (1995), vol. 150, p. 351.

[61] R. Heitz, T. R Ramachandran, A. Kalburge, Q. Xie, I. Mukhametzhanov, P. Chen, et A. Madhukar, "*Observation of Reentrant 2D to 3D Morphology Transition in Highly Strained Epitaxy : InAs on GaAs*", *Phys. Rev. Lett.* (1997), vol. 78, p. 4071.

[62] Thomas Clement, *Etude par spectroscopie optique de la dynamique de spins dans les nanostructures CdMnTe.* PhD thesis, Universite Joseph Fourier, 2009.

[63] Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Christian Schulhauser, Alexander Hogele, Bernhard Urbaszek, Ewan J. McGhee, Alexander O. Govorov, Jorge M. Garcia, Brian D. Gerardot, et Pierre M. Petroff, "*Hybridization of electronic states in quantum dots through photon emission*", *Nature* (2004), vol. 427, no. 6970, pp. 135–138.

[64] R. Leon, Yong Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou, et D. J. H. Cockayne, "*Effects of interdiffusion on the luminescence of InGaAs/GaAs quantum dots*", *Applied Physics Letters* (1996), vol. 69, no. 13, p. 1888.

[65] Surama Malik, Christine Roberts, Ray Murray, et Malcolm Pate, "*Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*", *Applied Physics Letters* (1997), vol. 71, no. 14, p. 1987.

[66] A. Greilich, M. Schwab, T. Berstermann, T. Auer, R. Oulton, D. R. Yakovlev, M. Bayer, V. Stavarache, D. Reuter, et A. Wieck, "*Tailored quantum dots for entangled photon pair creation*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 73, no. 4, p. 045323.

[67] D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, R. J. Young, A. J. Shields, P. Atkinson, et D. A. Ritchie, "*Control of fine-structure splitting of individual InAs quantum dots by rapid thermal annealing*", *Applied Physics Letters* (2007), vol. 90, no. 1, p. 011907.

[68] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, et A. J. Shields, "*A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*", *Nature* (2006), vol. 439, no. 7073, p. 179.

[69] Ph. Lelong et G. Bastard, "*Binding energies of excitons and charged excitons in GaAs/Ga(In)As quantum dots*", *Solid State Communications* (1996), vol. 98, no. 9, pp. 819 – 823.

[70] R. J Warburton, C. S Durr, K. Karrai, J. P Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, et P. M Petroff, "*Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (1997), vol. 79, p. 5282.

[71] J. J Finley, A. D Ashmore, A. Lema^itre, D. J Mowbray, M. S Skolnick, I. E Itskevich, P. A Maksym, M. Hopkinson, et T. F Krauss, "*Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2001), vol. 63, no. 7, p. 073307.

[72] Gregory Sallen, *Spectroscopie optique de boites quantiques de CdSe inserees dans des nanofils de ZnSe.* PhD thesis, Universite Joseph Fourier, 2009.

[73] T. D Happ, I. I Tartakovskii, V. D Kulakovskii, J. -P Reithmaier, M. Kamp, et A. Forchel, "*Enhanced light emission of InxGa1-xAs quantum dots in a two-dimensional photonic-crystal defect microcavity*", *Phys. Rev. B* (2002), vol. 66, no. 4, p. 041303.

[74] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld, et P. M. Petroff, "*Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure*", *Applied Physics Letters* (2001), vol. 78, p. 3932.

[75] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaitre, J. Hours, J. M. Gerard, et J. Bloch, "*Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity*", *Physical review letters* (2005), vol. 95, no. 6, p. 67401.

[76] A Kastler, "*Atomes a l'interieur d'un interferometre Perot-Fabry*", *Applied Optics* (1962), vol. 1, p. 17.

[77] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauss, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Loffler, S. Hofling, M. Kamp, et A. Forchel, "*AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*", *Applied Physics Letters* (2007), vol. 90, no. 25, p. 251109.

[78] SD Brorson, H. Yokoyama, et E. P. Ippen, "*Spontaneous emission rate alteration in optical waveguide structures*", *IEEE Journal of quantum electronics* (1990), vol. 26, p. 1492.

[79] B. Gayral, *Modification de l'emission spontanee de boites quantiques semi-conductrices dans des microcavites optiques.* PhD thesis, Paris VI, 2000.

[80] I. Abram, I. Robert, et R. Kuszelewicz, "*Spontaneous emission control in semiconductor microcavities with metallic or Bragg mirrors*", *IEEE Journal of quantum electronics* (1998), vol. 34, no. 1, pp. 71–76.

[81] Kikuo Ujihara, "*Spontaneous Emission and the Concept of Effective Area in a Very Short Optical Cavity with Plane-Parallel Dielectric Mirrors*", *Japanese Journal of Applied Physics* (1991), vol. 30, no. Part 2, No. 5B, pp. L901–L903.

[82] Se-Heon Kim, Sun-Kyung Kim, et Yong-Hee Lee, "*Vertical beaming of wavelength-scale photonic crystal resonators*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 73, no. 23, p. 235117.

[83] Tomoyuki Yoshie, Jelena Vuckovic, Axel Scherer, Hao Chen, et Dennis Deppe, "*High quality two-dimensional photonic crystal slab cavities*", *Applied Physics Letters* (2001), vol. 79, no. 26, p. 4289.

[84] J.L. Jewell, A. Scherer, S.L. McCall, Y.H Lee, S. Walker, J.P Harbison, et L.T. FLorez, "*Low-threshold electrically pumped vertical-cavity surface emitting microlasers.*", *Electronics Letters* (1989), vol. 25, p. 1123.

[85] J. M. Gerard, 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*", *Applied Physics Letters* (1996), vol. 69, no. 4, pp. 449–451.

[86] T. Rivera, J. P Debray, J. M. Gerard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo, et J. L. Oudar, "*Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy*", *Applied Physics Letters* (1999), vol. 74, p. 911.

[87] M. Bayer, T. L Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald, et A. Forchel, "*Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators*", *Phys. Rev. Lett.* (2001), vol. 86, p. 3168.

[88] H. Rigneault, J. Broudic, B. Gayral, et J. M Gerard, "*Far-field radiation from quantum boxes located in pillar microcavities*", *Optics Letters* (2001), vol. 26, no. 20, p. 1595.

[89] S. Reitzenstein, N. Gregersen, C. Kistner, M. Strauss, C. Schneider, L. Pan, T. R. Nielsen, S. Hofling, J. Mork, et A. Forchel, "*Oscillatory variations in the Q factors of high quality micropillar cavities*", *Applied Physics Letters* (2009), vol. 94, no. 6, p. 061108.

[90] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M Gerard, et I. Abram, "*Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (2001), vol. 87, p. 183601.

[91] Y.P Varshni, "*Temperature dependance of the energy gap in semiconductors*", *Physica* (1967), vol. 34, p. 149.

[92] S. Fafard, S Raymond, G Wang, R. Leon, D Leonard, Charbonneau, J.L Merz, P. M Petroff, et J.E Bowers, "*Temperature effects on the radiative recombination in self-assembled quantum dots*", *Surface Science* (1996), vol. 361/362, p. 778.

[93] L. Brusaferri, S. Sanguinetti, E. Grilli, M. Guzzi, A. Bignazzi, F. Bogani, L. Carraresi, M. Colocci, A. Bosacchi, P. Frigeri, et S. Franchi, "*Thermally activated carrier transfer and luminescence line shape in self-organized InAs quantum dots*", *Applied Physics Letters* (1996), vol. 69, no. 22, pp. 3354–3356.

[94] B. Gayral et J. M. Gerard, "*Photoluminescence experiment on quantum dots embedded in a large Purcell-factor microcavity*", *Physical Review B* (2008), vol. 78, no. 23, p. 235306.

[95] E. P. Ippen, C. V. Shank, et T. K. Gustafson, "*Self-phase modulation of picosecond pulses in optical fibers*", *Applied Physics Letters* (1974), vol. 24, no. 4, pp. 190–192.

[96] Ph. Lalanne, J. P. Hugonin, et J. M Gerard, "*Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit*", *Applied Physics Letters* (2004), vol. 84, no. 23, pp. 4726–4728.

[97] C. Bockler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Loffler, T. Kida, S. Hofling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon, *et al.*, "*Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities*", *Applied Physics Letters* (2008), vol. 92, p. 091107.

[98] M. Winger, T. Volz, G. Tarel, S. Portolan, A. Badolato, K. Hennessy, E. Hu, A. Beveratos, J. Finley, V. Savona, *et al.*, "*Mesoscopic cavity-QED : the physics behind off-resonant cavity excitation by a single quantum dot*", *Arxiv preprint arXiv :0907.1881* (2009).

[99] F. P Laussy, E. Del Valle, et C. Tejedor, "*Strong coupling of quantum dots in microcavities*", *Physical Review Letters* (2008), vol. 101, no. 8, p. 83601.

[100] A. Laucht, N. Hauke, J. M Villas-Boas, F. Hofbauer, G Bohm, M. Kaniber, et J. J Finley, "*Dephasing of Exciton Polaritons in Photoexcited InGaAs Quantum Dots in GaAs Nanocavities*", *Phys. Rev. Lett.* (2009), vol. 103, p. 087405.

[101] Jean-Michel Gerard et Bruno Gayral, "*Strong Purcell Effect for InAs Quantum Boxes in Three-Dimensional Solid-State Microcavities*", *J. Lightwave Technol.* (1999), vol. 17, no. 11, p. 2089.

[102] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczynski, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaitre, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, et P. Senellart, "*Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography*", *Physical Review Letters* (2008), vol. 101, no. 26, p. 267404.

[103] D. Morris, N. Perret, et S. Fafard, "*Carrier energy relaxation by means of Auger processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*", *Applied Physics Letters* (1999), vol. 75, no. 23, p. 3593.

[104] A. Fiore, P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam, U. Oesterle, R. Houdre, R. P. Stanley, et M. Ilegems, "*Time-resolved optical characterization of InAs/InGaAs quantum dots emitting at 1.3 mu m*", *Applied Physics Letters* (2000), vol. 76, no. 23, p. 3430.

[105] E. Tsitsishvili, R. v Baltz, et H. Kalt, "*Exciton spin relaxation in single semiconductor quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2003), vol. 67, p. 205330.

[106] M. Reischle, G. J. Beirne, R. Rossbach, M. Jetter, et P. Michler, "*Influence of the Dark Exciton State on the Optical and Quantum Optical Properties of Single Quantum Dots*", *Physical Review Letters* (2008), vol. 101, no. 14, p. 146402.

[107] Olivier Labeau, Philippe Tamarat, et Brahim Lounis, "*Temperature Dependence of the Luminescence Lifetime of Single CdSe/ZnS Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (2003), vol. 90, no. 25, p. 257404.

[108] David Press, Stephan Gotzinger, Stephan Reitzenstein, Carolin Hofmann, Andreas Loffler, Martin Kamp, Alfred Forchel, et Yoshihisa Yamamoto, "*Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime*", *Physical Review Letters* (2007), vol. 98, no. 11, p. 117402.

[109] G. Tarel et V. Savona, "*Emission spectrum of a quantum dot embedded in a nanocavity*", *physica status solidi (c)* (2009), vol. 6, no. 4.

[110] A Laucht, F Hofbauer, N. Hauke, J Angele, M. Kaniber, G Bohm, P Lodahl, M-C Amann, et J. J Finley, "*Electrical control of spontaneous emission and strong coupling for a single quantum dot*", *New J. Phys* (2009), vol. 11, p. 023034.

[111] I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira, C. Couteau, J. P. Poizat, et J. M. Gerard, "*Fast exciton spin relaxation in single quantum dots*", *Physical Review B* (2005), vol. 71, no. 23, p. 233304.

[112] G Fishman, *Energie et fonctions d'onde dans les semi-conducteurs.* EDP Sciences, 1988.

[113] S. J van Enk et H. J Kimble, "*Single atom in free space as a quantum aperture*", *Phys. Rev. A* (2000), vol. 61, p. 051802.

[114] S. J van Enk, "*Atoms, dipole waves, and strongly focused light beams*", *Phys. Rev. A* (2004), vol. 69, p. 043813.

[115] A. N. Vamivakas, M. Atature, J. Dreiser, S. T. Yilmaz, A. Badolato, A. K. Swan, B. B. Goldberg, A. Imamoglu, et M. S. Unlu, "*Strong extinction of a far-field laser beam by a single quantum dot*", *Nano letters* (2007), vol. 7, no. 9, p. 2892.

[116] G. Wrigge, I. Gerhardt, J. Hwang, G. Zumofen, et V. Sandoghdar, "*Efficient coupling of photons to a single molecule and the observation of its resonance fluorescence*", *Nature Physics* (2007), vol. 4, p. 60.

[117] Q. A Turchette, R. J Thompson, et H. J Kimble, "*One-dimensional atoms*", *Applied Physics B : Lasers and Optics* (1995), vol. 60, p. S1.

[118] E. Waks et J. Vuckovic, "*Dipole induced transparency in drop-filter cavity-waveguide systems*", *Physical review letters* (2006), vol. 96, no. 15, p. 153601.

[119] A. Auffeves-Garnier, C. Simon, J. M Gerard, et J. P Poizat, "*Giant optical nonlinearity induced by a single two-level system interacting with a cavity in the Purcell regime*", *Physical Review A* (2007), vol. 75, no. 5, p. 53823.

[120] J. T. Shen et S. Fan, "*Coherent photon transport from spontaneous emission in one-dimensional waveguides*", *Optics letters* (2005), vol. 30, no. 15, p. 2001.

[121] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, et J. M. Gerard, "*Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (2001), vol. 86, p. 1634.

[122] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, et A. D Wieck, "*Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2004), vol. 70, no. 3, p. 033301.

[123] M. T. Rakher, N. G. Stoltz, L. A. Coldren, P. M. Petroff, et D. Bouwmeester, "*Externally Mode-Matched Cavity Quantum Electrodynamics with Charge-Tunable Quantum Dots*", *Physical Review Letters* (2009), vol. 102, no. 9, p. 097403.

[124] Andrei Faraon, Ilya Fushman, Dirk Englund, Nick Stoltz, Pierre Petroff, et Jelena Vuckovic, "*Dipole induced transparency inwaveguide coupled photonic crystalcavities*", *Opt. Express* (2008), vol. 16, no. 16, p. 12154.

[125] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel, et Y. Arakawa, "*Rapid carrier relaxation in self-assembled InxGa1-xAs/GaAs quantum dots*", *Phys. Rev. B* (1996), vol. 54, p. 11532.

[126] G. Lecamp, P. Lalanne, et J. P. Hugonin, "*Very Large Spontaneous-Emission beta Factors in Photonic-Crystal Waveguides*", *Physical Review Letters* (2007), vol. 99, no. 2, p. 023902.

[127] T. Lund-Hansen, S. Stobbe, B. Julsgaard, H. Thyrrestrup, T. Sunner, M. Kamp, A. Forchel, et P. Lodahl, "*Experimental Realization of Highly Efficient Broadband Coupling of Single Quantum Dots to a Photonic Crystal Waveguide*", *Physical Review Letters* (2008), vol. 101, no. 11, p. 113903.

[128] I. Friedler, C. Sauvan, J. P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, et J. M. Gerard, "*Solid-state single photon sources : the nanowire antenna*", *Opt. Express* (2009), vol. 17, no. 4, p. 2095.

[129] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atature, J. Dreiser, E. Hu, P. M Petroff, et A. Imamoglu, "*Deterministic coupling of single quantum dots to single nanocavity modes*", *Science* (2005), vol. 308, p. 1158.

[130] S. Mosor, J. Hendrickson, B. C. Richards, J. Sweet, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Yoshie, A. Scherer, O. B. Shchekin, et D. G. Deppe, "*Scanning a photonic crystal slab nanocavity by condensation of xenon*", *Applied Physics Letters* (2005), vol. 87, no. 14, p. 141105.

# Annexe A

# Couplage déterministe

Que ce soit d'un point de vue fondamental ou applicatif, la question du couplage de l'émetteur à la cavité est primordiale. Or précisement nous avons vu que cette question est problématique dans le cas des boites quantiques. En effet, comme nous l'avons remarqué au chapitre 2, l'importance de l'effet Purcell ou a fortiori la possibilité de couplage fort dépend de l'accord spectral entre la boîte quantique et la cavité, et de son couplage spatial par rapport au maximum du champ. Le caractère aléatoire de la formation des boîtes quantiques constitue donc une contrainte pour la réalisation d'un dispositif performant. En effet, la méthode de croissance spontanée ne permet pas de controler avec une précision suffisante ni les propriétés d'émission d'une boîte quantique, ni sa position spatiale au sein de la cavité. Dans le domaine spectral, cette contrainte est partiellement relaxée par la possibilité de réaliser des cavités dont la position des modes peut être déterminée avec précision, associée à des techniques de plus en plus nombreuses pour modifier le spectre d'émission d'une boîte quantique, voire de la cavité elle même. Cependant, s'il est possible de trouver un candidat qui satisfasse le critère d'accord spectral, rien n'indique *a priori*, qu'il soit spatialement bien positionné. Dans la pratique, la probabilité est même très faible au contraire. La recherche d'un candidat qui satisfasse les deux critères est donc une étape longue et fastidieuse, qui nécessite beaucoup de patience. On se propose donc de terminer ce chapitre en présentant les résultats obtenus récemment dans plusieurs équipes, qui montrent qu'un couplage déterministe à la fois spectral et spatial est aujourd'hui possible. A mon sens, ces différentes approches pallient le défaut majeur de cette technologie et seront certainement généralisées dans un avenir proche.

Une première technique a été éprouvée avec succès en 2005 par Badolato et. al sur des boîtes quantiques insérée dans des cristaux photoniques (CP) [129]. Le procédé repose sur une succession d'étapes de croissance, d'imagerie et de lithographie. Le principe consiste à faire croitre un empilement de boîtes quantiques, alignées sous l'effet des contraintes, dans une membrane GaAs. Chaque empilement peut ensuite être repéré par microscope à force atomique (AFM) ou par microscope électronique à balayage (MEB), comme on peut le voir sur la figure A.1B. La longueur d'onde d'émission de la première boite (en bleue sur la figure) a été préalablement décalée par rapport aux suivantes lors d'une étape de recuit. On grave ensuite le motif du CP autour de la boîte en ajustant les paramètre de gravure de telle sorte que le mode de la cavité soit légèrement décalé vers le rouge par rapport à la boîte ($\sim 10nm$). Le couplage spectral est

ensuite obtenu par gravure humide en plongeant le CP dans une solution d'acide citrique. En ajustant le nombre de cycles de gravures, on parvient finalement à ajuster la longueur d'onde du mode sans dégrader le facteur de qualité.

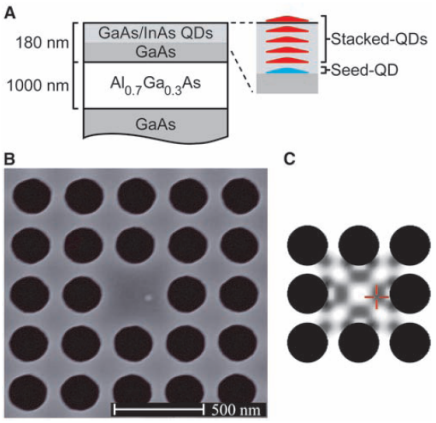


FIGURE A.1 – Image MEB d'un CP vu par le haut. La boîte quantique apparait sous la forme d'un point blanc autour duquel a été gravé la membrane. Les figures A et B présentent respectivment un schéma du CP vu en coupe, et une simulation du mode de cavité dans la structure. Figure tirée de [129]

D'autres techniques d'accord spectral ont été expérimentées sur le même principe mais qui consistent cette fois non plus à graver la membrane, mais à injecter un gaz (Xenon ou Azote), directement dans le cryostat, qui vient condenser à la surface modifiant ainsi l' indice effectif du CP [130]. L'avantage de cette méthode est qu'elle est réversible puisque le gaz s'évapore à nouveau lorsque l'on réchauffe l'échantillon.

Le même type de procédé de couplage spatial a depuis également été utilisé sur une couche unique de boîtes quantiques en interrompant la croissance de la membrane [44]. Il est alors possible d'obtenir une boite quantique *unique*, spatialement et spectralement couplée à la cavité (cf figure A.2).

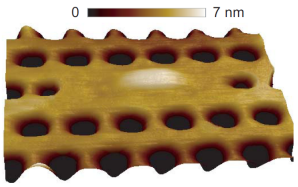


FIGURE A.2 – Image AFM d'un cristal photonique contenant une boîte quantique unique autour de laquelle a été gravé le motif. Figure issue de [44]

Plus récemment, une nouvelle technique, entièrement *in situ*, a été mise au point sur des micropiliers [102]. De la même manière que pour des échantillons "classiques", on fait croitre

une couche de boîtes quantiques entre deux miroirs de Bragg qui forme la cavité planaire, sur laquelle on dépose en plus une résine photo-sensible. Le principe repose sur l'utilisation de deux lasers à deux longueurs d'onde différentes : l'un excite les boîtes quantiques de manière non résonnante, tandis que le second permet de graver la résine. On repère alors une boîte quantique à partir de sa luminescence, puis on insole la résine à cet endroit. On grave donc finalement le pilier autour de la boîte sélectionnée, en choisissant son diamètre pour réaliser l'accord spectral (voir section 3.3).

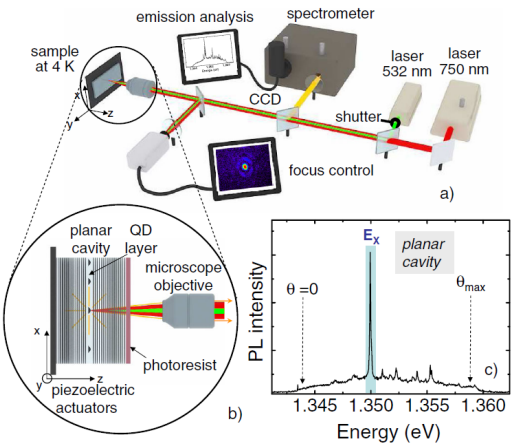


FIGURE A.3 – Schéma du montage expérimental permettant de repérer une boîte quantique et de graver un micropilier tout autour. Figure issue de [102]

En conclusion, ce type de méthodes constituent un véritable pas en avant dans la maîtrise du couplage entre une boîte quantique et la cavité environnante et offrent des perspectives intéressantes en ce qui concerne l'utilisation de ces systèmes pour réaliser par exemple des sources de photons uniques très efficaces ou encore des portes logiques de haute fidélité. On pourra également mentionner les derniers progrès concernant le contrôle de l'accord spectral boîte-cavité au moyen de champs électriques, qui complètent ces résultats [97, 110].

## Résumé

L'électrodynamique quantique en cavité (EDQC) étudie l'interaction matière rayonnement à son niveau le plus fondamental, ie lorque la matière est bien décrite par un système à deux niveaux, et la lumière par un mode unique du champ électromagnétique. Les premiers effets d'EDQC ont été observés dans le début des années 80 pour des systèmes de physique atomique. Avec le développement des techniques de micro et nano-fabrication, l'effet Purcell, puis le couplage fort, ont également pu être observés pour des atomes artificiels couplés à des cavités semiconductrices. Ces systèmes présentent les avantages d'être potentiellement intégrables sur un circuit et réalisables à grande échelle. Dans ce contexte, les boîtes quantiques semiconductrices (BQ) sont des candidats particulièrement prometteurs. Cependant, à cause de la présence d'une matrice environnante, source intrinsèque de décohérence, ces systèmes s'écartent du paradigme de la physique atomique. Dans le cas des BQs en particulier, ce couplage peut être important et modifier les observations de manière singulière.

On se propose ici d'étudier la mesure du facteur de Purcell, qui est un des facteurs de mérite de l'EDQC, pour une BQ dans une cavité de type micropilier. Différentes approches seront présentées et comparées entre elles, qui tiennent compte de la spécificité des BQ, et montrent que l'utilisation d'un modèle plus fin est nécessaire pour interpréter les résultats obtenus. Enfin, le dernier chapitre est consacré à une application intéressante de ce type de système, qui consiste à utiliser la saturation de la boîte quantique pour réaliser une non-linéarité optique à l'échelle du photon unique.

**Mots-clés :** Electrodynamique quantique en cavité, boîtes quantiques semiconductrices, microcavités, effet Purcell, non-linéarité optique

## Abstract

Cavity Quantum Electrodynamics (CQED) studies the light-matter interaction at the most fundamental level, ie when matter is well described by a two-level system and when light can be reduced to a single mode of the electromagnetic field. The first effects of CQED have been demonstrated in the 80ies in the field of atomic physics. Thanks to impressive progress in micro and nanoscale fabrication techniques, Purcell effect and strong coupling could be reached for artificial atoms coupled to semiconducting cavities during the past decade. Those systems are interesting for their high scalability and their potential for on-chip realisation. Within this context, semiconducting quantum dots (QD) are very promising candidates. However, due to the solid surrounding matrix, which is a source of decoherence, those systems diverge from the paradigm of atomic physics. For QDs in particular, this coupling can be important and thus highly modifies the results.

We propose here to study the measurement of the Purcell factor, which is an important factor of merit for CQED, in the case of a QD embedded in a micropillar type cavity. Several approaches are presented, which are compared to one-another, and which take into account the specificities of QDs. We show that the use of a more precise model is necessary to interpret the obtained results. The last chapter is devoted to an interesting application for this type of systems which consists in using the saturation of the quantum dot to implement a optical non-linearity at the single photon level.

**Keywords :** Quantum electrodynamics, semiconducting quantum dots, microcavities, Purcell effect, optical non-linearity.